HAL open science

Modélisation et simulation de l'agglomération des colloïdes dans un écoulement turbulent

Mikaël Mohaupt

To cite this version:

Mikaël Mohaupt. Modélisation et simulation de l'agglomération des colloïdes dans un écoulement turbulent. Autre [cond-mat.other]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2011. Français. NNT : 2011INPL068N . tel-01749524

HAL Id: tel-01749524

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749524v1

Submitted on 29 Mar 2018

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.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Nancy-Université

U.F.R ESSTIN
École Doctorale EMMA (Énergétique, Mécanique et Matériaux)
Département de formation doctorale : Mécanique et Énergétique

Thèse présentée pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
en Mécanique et Énergétique

par

Mikaël Mohaupt

Modélisation et simulation de l'agglomération des colloïdes dans un écoulement turbulent

---

Soutenue publiquement le 31 Octobre 2011 à l'ESSTIN

devant un jury composé de :

Rapporteurs :	M. Jacek Pozorski	Professeur, IMP, Académie Polonaise de Sciences, Gdansk
	M. Mikhael Gorokhovski	Professeur, École Centrale de Lyon
Examinateurs :	M. Jean-Pierre Brancher	Professeur, INPL
	Mme Anne Tanière	Maître de conférences HDR, UHP (Directrice de thèse)
	M. François Schmitt	Directeur de Recherche, CNRS
	M. Christophe Profeta	Maître de conférences, Université d'Évry
Invités :	M. Jean-Pierre Minier	Ingénieur de Recherche, EDF (Tuteur industriel)
	M. Benoît Oesterlé	Professeur, UHP

Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (UMR 7563)
Groupe ESSTIN - 2, rue Jean Lamour, 54519 Vandoeuvre-lès-Nancy

Le jeu est la forme la plus élevée de la recherche.

Albert Einstein

Remerciements

Avant tout, je souhaite exprimer ma plus sincère gratitude à MM. Jacek Pozorski et Mikhael Gorokhovski, rapporteurs de mon travail, pour leur implication et le sérieux de leurs remarques, qui ont permis d'améliorer la présentation de mes travaux.

Je tiens à remercier particulièrement M. Jean-Pierre Minier. Il a su être disponible dans les moments opportuns et apporter un soutien scientifique de grande qualité pour l'avancement du sujet. Ce travail de thèse m'a apporté un développement scientifique et humain, qui sont le fruit de longues et enrichissantes discussions.

Un grand merci à Anne Tanière pour sa disponibilité, son engagement et son soutien, scientifique et humain, qui tout au long de ma thèse auront stimulé mon esprit d'analyse ainsi que mon engagement vis à vis du sujet traité.

Merci à Mme Anne Jaubertie, responsable du projet MOFPHET-C à EDF R&D Chatou, pour m'avoir permis d'évoluer dans le contexte industriel à travers plusieurs séjour dans le laboratoire MFEE d'EDF. Merci aussi à M. Mathieu Guingo pour son implication dans le projet, qui a toujours amené des remarques constructives pour mes travaux.

Les doctorants et post-doctorants du laboratoire méritent aussi mes remerciements et mes encouragements, Clément, Romain, Patrice et Kamil, qui m'ont entouré et accompagné au quotidien. Un grand merci aussi à Mélanie, secrétaire dans notre service, toujours disponible pour être mon interlocutrice auprès des services administratifs. Aussi, je souhaite remercier les doctorants du centre de recherche d'EDF, Christophe pour son intérêt et ses questionnements intéressants sur mon travail, Arnaud pour le prêt de son bureau et Clara pour pour m'avoir accueilli dans ledit bureau. Je souhaite une bonne continuation à tous pour la suite.

De sincères remerciements vont à Frédérique, Virginie et Lætitia pour leurs lumières qui m'auront permis de ménager les lecteurs de ce mémoire en corrigeant les fautes d'orthographes.

Un grand merci aussi à Ben, Sarah et Sarah, qui m'ont accueilli lors de tous mes déplacements dans la capitale. Vous m'avez aussi permis de contre-balancer tous les investissements les plus pointus de mes journées de travail par la détente de l'esprit la plus intense de chaque soirée.

De chaleureux remerciements vont également à ma maman, ma famille, et tout particulièrement à Marthe, pour m'avoir soutenu et accompagné durant ces trois années de thèse, et bien plus encore.

Table des matières

I Le phénomène d'agglomération : enjeux et solutions existantes 1

1 Représentation physique et numérique de l'agglomération . . . 3
1.1 La physique du phénomène d'agglomération . . . 3
1.2 Modélisation du mouvement d'une particule . . . 4
1.2.1 Une approche lagrangienne . . . 4
1.2.2 Analyse des forces en présence et simplifications . . . 5
1.2.3 La modélisation des interactions par la théorie DLVO . . . 6
1.2.4 Le système d'équations retenu . . . 9
1.3 L'intégration temporelle des équations du mouvement . . . 10
1.3.1 Les régimes de déplacement : balistique et diffusif . . . 10
1.3.2 Discrétisation temporelle des équations de mouvement . . . 11
1.3.3 Note sur la vitesse du fluide vue $\mathbf{U}_s(t)$ . . . 13
1.4 Conclusion partielle . . . 14

2 Les noyaux d'agglomération . . . 17
2.1 L'équation de bilan de population . . . 17
2.2 Les noyaux de collision et d'agglomération . . . 18
2.2.1 Gravitaire . . . 18
2.2.2 Écoulement cisaillé . . . 18
2.2.3 Turbulent . . . 19
2.2.4 Brownien . . . 20
2.3 Nombre de collisions et noyaux dans les simulations . . . 22
2.4 Conclusion partielle . . . 22

3 Traitement numérique local des collisions . . . 23
3.1 Présentation des algorithmes déterministes existants . . . 23
3.1.1 L'algorithme par recouvrement . . . 23
3.1.2 L'algorithme dérivé de la dynamique moléculaire . . . 25
3.2 Validation numérique de l'algorithme dérivé de la dynamique moléculaire . . . 27
3.2.1 La théorie cinétique des gaz . . . 28
3.2.2 L'algorithme de collision type MD appliqué à un mouvement brownien pur 30
3.2.3 Analyse des coûts numériques . . . 31
3.3 Tests numériques des algorithmes de collision dans le régime diffusif . . . 33
3.4 Conclusion partielle . . . 36

4 Conclusion de la première partie . . . 37

II L'agglomération de particules diffusives 39

5 Un nouvel algorithme de collision basé sur les ponts diffusifs 41
5.1 Préambule : l'utilisation de ponts browniens dans la détection des collisions avec une paroi fixe 41
5.2 Modélisation du mouvement : le cas limite diffusif 43
5.3 La détection de la collision 44
5.3.1 Une nouvelle méthode stochastique de détection des collisions 44
5.3.2 Validation numérique 47
5.4 Le traitement de la collision élastique 52
5.4.1 L'instant de la collision 52
5.4.2 Le lieu de la collision 55
5.4.3 Traitement de la collision - étape de correction 57
5.4.4 Validation numérique 57
5.5 Conclusion partielle - L'algorithme complet 59

6 Application du nouvel algorithme à l'agglomération due à la turbulence 63
6.1 Rappels sur la théorie de la turbulence et l'agglomération 63
6.2 Analyse d'influence qualitative 65
6.3 Notion de diffusivité relative 66
6.3.1 Représentation théorique et définition 66
6.3.2 Diffusivité d'une paire de particules dans un écoulement turbulent 69
6.4 La prise en compte des deux effets brownien et turbulent dans un unique processus de diffusion 70
6.5 Conclusion partielle et questions ouvertes 72

7 Pistes de reflexion et questions ouvertes 75
7.1 L'utilisation de la nouvelle méthode sur une trajectoire diffusive pure 75
7.1.1 La conjecture sur la diffusivité relative 76
7.1.2 Diffusivité relative de phénomènes physiques autres que la turbulence et le mouvement brownien 76
7.2 L'utilisation de la nouvelle méthode sur une trajectoire diffusive amortie 76
7.2.1 Probabilité de passage d'un seuil pour un mouvement brownien amorti . 77
7.2.2 Noyau de collision théorique d'un mouvement brownien amorti 78
7.3 Conclusion partielle 78

Appendices 83

Annexe A Calcul du coefficient de diffusion B du mouvement Brownien pur 85

Annexe B Le modèle de double couche 86

Annexe C Calcul de l'énergie cinétique relative de deux particules 88

Annexe D Validation du schéma d'intégration 91
D.1 Statistiques du mouvement brownien aux temps courts 91
D.2 Statistiques du mouvement brownien aux temps longs 92
D.3 Erreurs statistiques sur les variables simulées 95

Annexe E Les outils mathématiques stochastiques **100**
E.1 Le processus de Wiener 100
E.2 Les règles du calcul d'Itô 101

Annexe F Calcul du Δt_{coll} pour les algorithmes déterministes **103**

Annexe G Outils mathématiques nécessaires aux calculs stochastiques **104**
G.1 Définition d'une diffusion 104
G.2 Vocabulaire 104
G.3 Fonction de Green 104
G.4 Espérance 105
G.5 Définition du temps d'atteinte 105
G.6 Transformée de Laplace 105
G.7 Probabilité conditionnelle 105
G.8 Propriété de Markov 106
G.9 Formule d'absolue-continuité pour les ponts 106

Annexe H Calcul de la probabilité de collision **107**
H.1 Cas général d'une diffusion 107
H.2 Dans le cas du mouvement Brownien 109
H.2.1 Cas général : $W_t \sim \mathcal{N}(0,t)$. 109
H.2.2 Cas particulier : $X_t \sim \mathcal{N}(0,B^2t)$. 109
H.3 Dans le cas du processus de Bessel d'ordre $1/2$ (dimension 3) 109
H.3.1 Cas général : $X_t = \left(\sum_{i=1}^3 W_t^2\right)^{\frac{1}{2}}$. 109
H.3.2 Cas particulier : $R_t = \left(\sum_{i=1}^3 (BW_t)^2\right)^{\frac{1}{2}}$. 110

Annexe I Calcul stochastique du temps exact de la collision **112**
I.1 Notion de premier temps d'atteinte d'un niveau 112
I.2 Densité de probabilité du premier temps d'atteinte d'un niveau donné pour un pont 112
I.2.1 Généralités 112
I.2.2 Pour le Bessel 3 114
I.3 Fonction de répartition du premier temps d'atteinte d'un niveau donné pour un pont de Bessel 3 115
I.4 Simulation et validation du temps d'atteinte dans notre code de calcul 124

Annexe J Calcul stochastique sur le pont Brownien représentant le barycentre de 2 particules **126**

Annexe K Publication scientifique **128**

Bibliographie **140**

Nomenclature

Lettres romaines

A_{12}	constante d'Hamaker des espèces 1 et 2 (J)
B	coefficient de diffusion
B_{vit}	coefficient de diffusion sur la vitesse d'une particule ($\mathrm{m\ s^{1/2}}$)
B_{pos}	coefficient de diffusion sur la position d'une particule ($\mathrm{m\ s^{1/2}}$)
B_{ij}	coefficient de diffusion sur la position relative à une paire de particules ($\mathrm{m\ s^{1/2}}$)
c_i	vitesse d'agitation moyenne d'une particule i ($\mathrm{m}\ s^{-1}$)
$\overline{c_{ij}}$	vitesse d'agitation particulaire relative moyenne ($\mathrm{m}\ s^{-1}$)
C_{12}	constante dépendante des caractéristiques polaires des espèces 1 et 2 ($\mathrm{J\ m^6}$)
C_D	coefficient de traînée ($-$)
D	distance de séparation entre deux surfaces chargées (m)
D_i	coefficient de diffusion d'Einstein d'une particule i ($\mathrm{m^2}\ s^{-1}$)
d_p	diamètre particulaire (m)
e	charge élémentaire (m)
E_i	énergie cinétique moyenne par unité de masse de la particule i ($\mathrm{m^2\ s^{-2}}$)
E_C^{rel}	énergie cinétique relative à deux particules ($\mathrm{kg\ m^2\ s^{-2}}$)
Erf	fonction d'erreur ($-$)
Erfc	fonction d'erreur complémentaire ($-$)
f_c	fréquence de collision théorique ($\mathrm{s^{-1}}$)
F	fonction de répartition de probabilité ($-$)
F_B	force brownienne (N)
F_D	force de traînée (N)
F_{ext}	force extérieure (N)
F_I	force d'interaction (N)
F_L	force de portance (N)
F_p^i	force d'interaction particule-particule (N)
F_w^i	force d'interaction particule-paroi (N)
g	accélération de la pesanteur ($\mathrm{m\ s^{-2}}$)
$\mathbf{I}$	matrice identité ($-$)
k_B	constante de Boltzmann ($\mathrm{m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}}$)
K	noyau de collision ($\mathrm{m^3\ s^{-1}}$)
K_e	noyau de collision estimé dans une simulation ($\mathrm{m^3\ s^{-1}}$)
K_{th}	noyau de collision théorique ($\mathrm{m^3\ s^{-1}}$)
Kn	nombre de Knudsen ($-$)
Kn_D	nombre de Knudsen particulaire ($-$)
L	longueur du domaine d'étude numérique (m)
L_k	échelle de taille caractéristique des grandes échelles de la turbulence (m)
m_p	masse particulaire (kg)

n	nombre de particules $(-)$
n_k	nombre de particules de la classe k $(-)$
$n(v_k)$	nombre de particules de volume v_k $(-)$
n_0	concentration ionique d'une solution (m^{-3})
N	nombre total de particules $(-)$
N_{coll}	nombre total de collisions $(-)$
N_c	nombre de collisions estimé dans une simulation $(-)$
N_c^{th}	nombre de collisions théorique $(-)$
$\mathcal{N}_A$	Nombre d'Avogadro $(-)$
$\mathbb{P}$	probabilité $(-)$
$\mathcal{P}$	probabilité de rencontre entre une particule et la paroi fixe [Eq. 5.4] $(-)$
$\mathcal{P}_a^b(\beta)$	probabilité pour atteindre le niveau β sur un pont diffusif de a vers b $(-)$
r	distance de séparation entre les centres de deux particules (m)
r_p	rayon d'une particule (m)
r_{ij}	somme des rayons des particules i et j, $r_{ij} = r_i + r_j$ (m)
r_{VdW}	rayon de Van der Waals d'une molécule (m)
R_t	processus de Bessel au temps t $(-)$
Re	nombre de Reynolds $(-)$
Re_p	nombre de Reynolds particulaire $(-)$
S	gradient de vitesse dans le sens de l'écoulement (écoulement cisaillé) (s^{-1})
St	nombre de Stokes $(-)$
t	temps (s)
T_a	temps d'atteinte d'un processus diffusif au niveau a (s)
T_p	temps (s)
$\mathbf{U}$	vecteur vitesse $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\mathbf{U}_p$	vecteur vitesse d'une particule $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\mathbf{U}_{p,\text{lim}}$	vecteur vitesse limite de chute d'une particule $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\overline{U_m}$	vitesse moyenne d'un ensemble de molécules $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\mathbf{U}_r$	vecteur vitesse relative entre le fluide et la particule$(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\mathbf{U}_s$	vecteur vitesse du fluide à la position de la particule $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\mathbf{U}_s^{DNS}$	vecteur vitesse du fluide issu d'une simulation numérique directe (DNS) $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
v	volume d'une particule (m^3)
v_i	volume d'une particule i (m^3)
V_A	potentiel d'interaction de Van der Waals $(\mathrm{kg\ m}^2\ \mathrm{s}^{-2})$
V_R	potentiel d'interaction électrostatique $(\mathrm{kg\ m}^2\ \mathrm{s}^{-2})$
$\mathbf{V}_{ij}$	vecteur vitesse relative des particules i et j $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
$\mathbf{V}_i$	vecteur vitesse d'une particule i $(\mathrm{m\ s}^{-1})$
W_{DLVO}	potentiel d'interaction DLVO $(\mathrm{kg\ m}^2\ \mathrm{s}^{-2})$
$W_p(D)$	potentiel d'interaction DLVO entre deux sphères $(\mathrm{kg\ m}^2\ \mathrm{s}^{-2})$
$W_w(D)$	potentiel d'interaction DLVO entre une sphère et une paroi plane $(\mathrm{kg\ m}^2\ \mathrm{s}^{-2})$
$W_{\text{DLVO}}^{\text{max}}$	potentiel d'interaction DLVO maximum - barrière d'énergie $(\mathrm{kg\ m}^2\ \mathrm{s}^{-2})$
W_t	processus de Wiener $(\mathrm{s}^{1/2})$
$\mathbf{W}_t$	vecteur de processus de Wiener $(\mathrm{s}^{1/2})$
$\mathbf{X}$	vecteur position (m)
$\mathbf{X}_{ij}$	vecteur position relative (m)
$\mathbf{X}_p$	vecteur position d'une particule (m)
y_0	position initiale selon la direction y (m)
$y_{a,b}$	position finale selon la direction y (m)
$\mathbf{Z}_p$	vecteur d'état d'une particule (m)

Lettres grecques

β	noyau d'agglomération ($\mathrm{m}^3\ \mathrm{s}^{-1}$)
Γ	noyau de collision ($\mathrm{m}^3\ \mathrm{s}^{-1}$)
Γ_e	noyau de collision estimé dans une simulation ($\mathrm{m}^3\ \mathrm{s}^{-1}$)
Γ_{th}	noyau de collision théorique ($\mathrm{m}^3\ \mathrm{s}^{-1}$)
Δt	pas de temps (s)
Δt_{coll}	pas de temps de la collision (s)
Δt_{lim}	pas de temps maximum pour détecter toutes les collisions (s)
$< \Delta \mathbf{X}_p >$	libre parcours moyen d'une particule sur pas de temps (m)
ϵ	taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente ($\mathrm{m}^2\ \mathrm{s}^{-3}$)
$\zeta_{x,v}$	variable aléatoire gaussienne standard ($-$)
$\zeta_{x,y,z}$	variable aléatoire gaussienne standard [Sys. 5.2] ($-$)
η_k	échelle de taille de Kolmogorov (m)
θ	température (K)
κ^{-1}	longueur de Debye (m)
λ_m	libre parcours moyen des molécules fluides (m)
μ_f	viscosité dynamique moyenne du fluide ($\mathrm{kg}\ \mathrm{m}^{-1}\ \mathrm{s}^{-1}$)
ν_f	viscosité cinématique moyenne du fluide ($\mathrm{m}^2\ \mathrm{s}^{-1}$)
ρ	densité ($\mathrm{kg}\ \mathrm{m}^{-3}$)
τ_p	temps de relaxation d'une particule (s)
τ_k	échelle de temps de Kolmogorov (s)
ϕ	fraction volumique ($-$)
ϕ_0	potentiel de surface (V)
ψ	efficacité d'agglomération ($-$)

Indices

p	phase discrète (particule)
f	phase continue (fluide)
fm	régime moléculaire libre
co	régime continu
i	particule i
j	particule j
ij	valeur relative $(j - i)$
$l = 1, 2, 3$	direction de l'espace
$m = 1, 2, 3$	direction de l'espace

Exposants

$l = 1, 2, 3$	direction de l'espace

Notations spéciales

$\lvert \cdot \rvert$	valeur absolue
$\lVert \cdot \rVert$	norme Euclidienne
$< \cdot >$	valeur moyenne, *i.e.* $(1/N) \sum_{i=1}^{N} (\cdot)$
$d \cdot (t)$	incrément de temps
$\frac{d(\cdot)}{dt}$	dérivée par rapport au temps
$\frac{d(\cdot)}{dx}$	dérivée par rapport à la direction x

Introduction

L'agglomération des particules est un procédé à estimer dans de nombreuses applications industrielles. Que ce soit lors des phases de filtrages, pour lesquelles l'agglomération doit être évitée pour des problèmes d'encrassements, ou lors de la production de poudres ou de composés chimiques, où il faut alors la provoquer, le nombre de processus industriels qui nécessitent une meilleure connaissance de ce phénomène est en constante évolution, ce qui suscite l'intérêt des chercheurs. Avec des applications dans une vaste gamme de domaines scientifiques, comme la météorologie, la médecine, l'industrie alimentaire ou l'ingénierie nucléaire, les écoulements qui transportent des particules solides ont besoin d'être étudiés de manière intensive, que ce soit pour l'élaboration de nouvelles théories ou pour l'optimisation de procédés industriels. Ces études de plus en plus complexes et complètes contribuent à l'avancement de la recherche scientifique et sont un enjeu financier majeur pour l'industrie. Ce contexte implique l'étude approfondie des écoulements diphasiques, qui englobent un ensemble à deux phases, liquide, gazeuse ou solide, qui peuvent interagir l'une avec l'autre. Parmi cette famille d'écoulement, notre étude s'intéresse au cas des écoulements à inclusions dispersées.

L'ensemble de ce travail s'inscrit dans un projet global qui concerne l'étude du phénomène d'encrassement, pour des applications relevant du domaine de la sûreté nucléaire. Dans ce contexte industriel, un colmatage peut être observé à divers endroits dans les centrales nucléaires à eau pressurisée, qui fonctionnent avec trois boucles hydrauliques (primaire, secondaire et refroidissement) en interconnexion pour produire de l'électricité. Ces circuits transportent de l'eau qui passe de l'état liquide à l'état de vapeur en plusieurs endroits. Par usure de fonctionnement, des particules sub-microniques et microniques naissent dans les écoulements fluides, extraites des matériaux qui constituent les canalisations et les différents organes de la centrale. Des agglomérats se forment à partir de ces très petites inclusions ayant des propriétés électro-chimiques identiques, ce qui a pour effet d'augmenter le taux de déposition sur les parois, menant jusqu'à la situation critique de colmatage des conduites qui altère les caractéristiques thermohydrauliques de l'écoulement. Ce colmatage vient perturber le bon fonctionnement des centrales et mettre en défaut la sûreté des installations. Par exemple dans les centrales à eau pressurisée, le dépôt et le colmatage est observable principalement dans les générateurs de vapeurs, à l'origine de la vaporisation du fluide qui met les turbines de production d'électricité en rotation. Un dépôt non négligeable peut aussi apparaître au niveau des crayons de combustibles et conduire à des dysfonctionnements importants dans les échanges énergétiques, primordiaux dans cet organe. Dans ce contexte, l'encrassement englobe plusieurs mécanismes complémentaires, néfastes pour la sûreté de ce type de réacteurs, qui peuvent être représentés par quatre phases distinctes que l'on peut aborder par des approches parallèles et complémentaires. Précisément, ces phases sont le dépôt, le ré-entraînement, l'agglomération et le colmatage, illustrées sur la figure 1. **L'étude proposée ici se concentre sur la phase d'agglomération.**

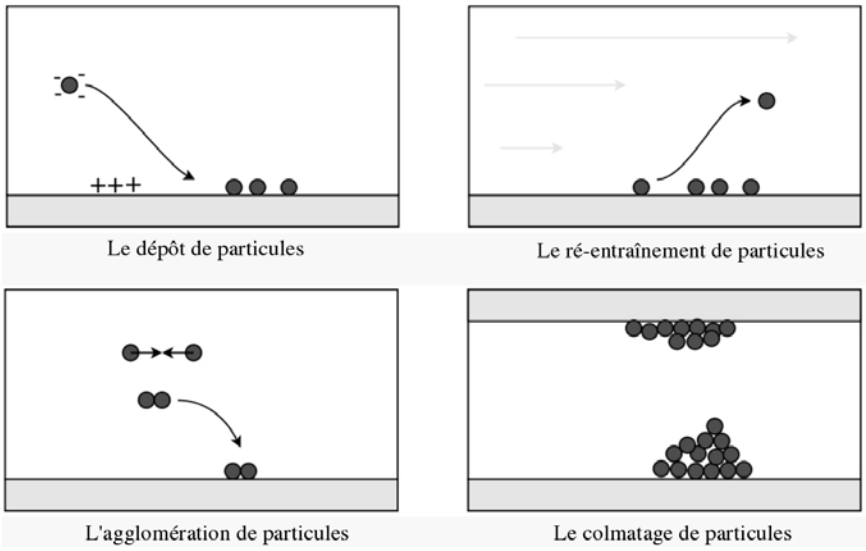


FIGURE 1 – Mécanismes élémentaires du transport de particules (Thèse de M. Guingo - 2008)

Une partie de la problématique d'encrassement est abordée dans l'optique de proposer une modélisation et une solution pour le traitement numérique de la phase d'agglomération à partir des particules colloïdales transportées dans les écoulements turbulents. Même si une résolution est possible par des méthodes existantes, telle que la méthode des bilans de population (Smoluchowski, 1906) ou un raffinement de cette technique basée sur la topologie des écoulements (Guingo, 2008), les hypothèses qui garantissent le bon fonctionnement de ces méthodes sont poussées dans leurs limites d'utilisation par l'étude d'un cas appliqué dans sa globalité. De la même manière, certaines études locales nécessitent la connaissance de grandeurs statistiques macroscopiques pour prendre en compte la phase d'agglomération des particules (Ho et Sommerfeld, 2002). Néanmoins, l'utilisation de chacune de ces méthodes nécessite comme point de départ la connaissance d'un unique taux d'agglomération, communément appelé *noyau d'agglomération*. Cependant, un contexte industriel complet engendre des écoulements complexes pour lesquels les différentes zones (proche paroi ou la zone centrale de l'écoulement) ne sont pas distinguées de manière stricte. Ainsi en pratique, il n'est pas évident de déterminer à l'avance un noyau d'agglomération qui représente toute la physique d'un tel écoulement. Ceci implique que les phénomènes à l'origine de l'agglomération des particules, différents en fonction des zones de l'écoulement et des caractéristiques des particules, ne peuvent pas être identifiés clairement et simplifiés. D'autre part, les ensembles de particules peuvent être non-homogènes et distribués dans l'espace de différentes manières en fonction des concentrations préférentielles causées par l'écoulement fluide, ce qui complique l'utilisation des méthodes précitées.

Une voie de résolution possible et acceptable pour les simulations industrielles existantes est de s'intéresser à l'adaptation de ces méthodes pour les cas complexes exposés ci dessus. Afin de répondre à cette problématique, nous plaçons notre étude à un niveau de finesse très inférieur par rapport à ces résolutions macroscopiques, en proposant de considérer le problème d'un point de vue local. C'est ainsi que nous choisissons de nous placer dans le cadre d'une

simulation numérique directe pour la résolution de la phase continue, afin de connaître les caractéristiques du fluide en tout point et à chaque instant, dans le but de concentrer les développements presque exclusivement sur la modélisation et le traitement du phénomène d'agglomération des particules. Cette étude doit permettre d'alimenter les méthodes macroscopiques de type *bilan de population* avec les taux d'agglomérations caractéristiques d'écoulements dispersés complexes. D'autre part, la finesse de cette approche doit également permettre de s'intéresser aux mécanismes élémentaires de l'agglomération que sont les phénomènes d'interactions chimiques, qui interviennent à une échelle de taille bien inférieure à la taille caractéristique des particules.

Une autre caractéristique importante abordée dans ce document réside dans les caractéristiques de la gamme de particules considérées, qui se situe dans le domaine sub-micronique et micronique. Défini par l'adjectif *colloïdale*, ce type de particule est peu sensible à la gravité et beaucoup plus sensible à l'agitation brownienne et à la turbulence. L'étude des colloïdes soulève des considérations nouvelles en terme de modélisation. Aussi, la finesse de la résolution spatiale nécessaire dans les simulations numériques faisant intervenir ce type de particules nécessite des précautions d'utilisation pour éviter un accroissement significatif des coûts liés au calcul numérique. C'est un point clé pour l'industrie étant donné le nombre de domaines physiques dans lesquels les particules colloïdales sont impliquées, en vu d'obtenir des résultats toujours plus précis pour l'optimisation de procédés par des études numériques.

Ce document se place ainsi dans le cadre d'une expérience numérique destinée à alimenter les méthodes de traitement de l'agglomération utilisées dans des codes de thermohydraulique diphasique macroscopiques, de type industriel. Il s'agit de mettre en place une méthodologie capable d'étudier de manière fine le phénomène d'agglomération des particules colloïdales, en vu d'extraire les taux d'agglomération des particules dans le cadre d'écoulements complexes. Dans un même temps, cette méthode doit être capable de prendre en compte la modélisation des forces d'interactions, à l'échelle sub-micronique. La méthodologie pourra être utilisée sur une gamme de diamètres des particules relativement étendue d'une manière continue.

Avec l'objectif de proposer une solution à la problématique exposée, ce manuscrit comprend de deux grandes parties. La première s'emploie à mettre en place un contexte de simulation numérique pour le traitement de la phase d'agglomération de particules colloïdales. La phase continue est simulée par un code de simulation numérique directe et les inclusions solides sont suivies par une méthode lagrangienne. L'étude des forces d'interactions électro-chimiques est abordée et la détection de ces interactions entre les particules, autrement dit la détection des collisions, est analysée en utilisant les algorithmes déterministes existants (Sundaram et Collins, 1996; Sigurgeirsson, Stuart et Wan, 2001). La seconde partie fait apparaître la nature stochastique intrinsèque à cette détection des interactions entre des particules colloïdales. Une méthodologie complète pour le traitement des collisions est proposée. Basée sur des raisonnements stochastiques, elle englobe la détection et le traitement des collisions élastiques. Développée et validée dans le cadre physique du mouvement brownien des particules, la solution présentée est étendue au cas de colloïdes dont le mouvement est dû à la turbulence du fluide. La problématique exposée soulève des questions dans des domaines scientifiques différents qui se rejoignent de manière complémentaire sur le contexte physique étudié.

Première partie

Le phénomène d'agglomération : enjeux et solutions existantes

Chapitre 1

Représentation physique et numérique de l'agglomération

Il s'agit de résoudre numériquement l'agglomération de particules transportées dans un champ fluide turbulent. Les mécanismes physiques qui agissent sur les particules ont une importance relative différente sur les particules les plus fines et les inclusions les plus inertielles. Il est primordial de noter la gamme de diamètre qui nous intéresse afin de définir au mieux le cadre physique. L'agglomération prend son origine à partir de particules très petites et très faiblement inertielles. Dans notre cas, nous définissons la limite inférieure en diamètre de ces particules de l'ordre d'une centaine de nanomètres. À l'opposé et lorsque, par agglomération, les particules grossissent, une limite de quelques micromètres semble acceptable pour que les forces motrices principales deviennent uniquement d'origine turbulente. Cette gamme de diamètre ainsi définie entre $100nm$ et $2\mu m$ relève des particules du domaine colloïdal. Dans un contexte physique, les colloïdes sont par définition des particules solides pour lesquelles la vitesse d'agitation moléculaire, de l'ordre de $\sqrt{\frac{8k_B\theta}{\pi m_p}}$ est du même ordre de grandeur que la vitesse limite de chute, c'est à dire de l'ordre de $g\tau_p$. Dans ces expressions, k_B la constante de Boltzmann, θ la température et m_p la masse de la particule alors que g est l'accélération de la gravité et τ_p le temps de relaxation de la particule.

1.1 La physique du phénomène d'agglomération

Le phénomène d'agglomération dans son ensemble fait intervenir des mécanismes physiques complexes d'origines différentes. Avant de parvenir à une agglomération entre deux partenaires, ces derniers doivent se rencontrer dans l'espace et dans le temps. Ce que nous désignerons par le terme "collision" englobe ce caractère : la détection des interactions entre les particules. Cette propriété est dépendante des conditions de l'écoulement et des caractéristiques des particules. C'est une condition nécessaire mais pas suffisante à l'agglomération qui doit être complétée par une adhésion effective entre les deux partenaires. Une collision entre deux particules peut alors aboutir à deux issues : un rebond ou une agglomération.

Ainsi, la première étape à traiter est la collision entre deux partenaires. Le lieu et l'instant d'une telle interaction va dépendre des forces qui agissent sur les particules, qui peuvent avoir des natures physiques différentes en fonction des particules considérées. Ces forces peuvent

être de nature hydrodynamique, mécanique ou bien encore de type électro-chimique. Elles sont le moteur du mouvement de chacune des particules et conditionnent à chaque instant la position relative entre deux éventuels partenaires de collision.

Dès lors que les partenaires se trouvent assez proches l'un de l'autre, les forces d'adhésion deviennent influentes et peuvent conduire ou non à un agglomérat. La distance à partir de laquelle ces interactions sont prédominantes varie de quelques nanomètres au micron. Elle dépend des particules considérées et du milieu dans lequel elles évoluent. Relevant de la chimie des interfaces, cette étape se résume dans notre cadre à l'application de forces issues de la théorie DLVO (Derjaguin et Landau, 1941; Verwey et Overbeek, 1948). Ce type de modélisation pour les interactions électro-chimiques entre des entités chargées dans un milieu liquide permet de donner les expressions des potentiels d'interactions en fonction de la distance qui sépare les deux charges (qui peuvent être considérées comme des dipôles). Dans le cas des écoulements dispersés, ces potentiels sont de type particule-particule ou particule-paroi. Les forces d'adhésion, que nous considérons de nature électro-chimique, sont supposées ici comme étant dérivées des potentiels du modèle DLVO.

*L'approche exposée permet de tirer une première conclusion concernant le traitement des deux phases **collision** et **adhésion** : elles sont de natures physiques différentes et sont quasiment indépendantes l'une de l'autre. Ces deux phases peuvent donc être traitées par deux approches successives.*

1.2 Modélisation du mouvement d'une particule

1.2.1 Une approche lagrangienne

Le contexte physique étudié correspond à l'agglomération de particules dans un écoulement turbulent. Le suivi de l'évolution d'un agglomérat dans le temps sous-entend d'être capable de suivre des particules de tailles différentes, l'agglomérat pouvant grossir. La modélisation du mouvement des particules doit donc être la plus complète possible et faire intervenir les mécanismes physiques en adéquation avec les forces qui agissent sur chaque particule en fonction de leurs inerties. Par exemple, pour une particule colloïdale d'une taille comprise entre quelques nanomètres et quelques microns, les plus petites et donc les moins inertielles de ces particules sont très affectées par l'agitation thermique, mais demeurent insensibles aux effets turbulents ou gravitaires. À l'opposé, les plus grosses d'entre elles ne seront pas affectées par l'agitation brownienne. La modélisation choisie pour le suivi des particules dans ce type d'écoulement correspond ainsi à la physique de Langevin (1908) pour une particule isolée. Cela revient à effectuer un bilan des forces agissant sur cette particule :

$$\begin{cases} \dfrac{d\mathbf{X_p}(t)}{dt} = \mathbf{U_p}(t), \\ \dfrac{d\mathbf{U_p}(t)}{dt} = \dfrac{1}{m_p}\left[F_D + F_L + F_{\text{ext}} + F_B + F_I\right], \end{cases} \tag{1.1}$$

avec $\mathbf{X_p}(t)$ et $\mathbf{U_p}(t)$ les vecteurs position et la vitesse de la particule à l'instant t et m_p sa masse. Les forces physiques motrices du mouvement ont des origines physiques différentes. Elles peuvent être de nature hydrodynamique telles que les forces de traînée F_D et de portance F_L. Les forces représentatives du milieu extérieur, notées F_{ext}, peuvent inclure la gravité par exemple. Le mouvement brownien F_B est influent dans le cas des petites particules car

leurs faibles inerties les rendent sensibles à l'agitation thermique moléculaire. Les forces d'interactions, entre les particules ou entre une particule et la paroi sont notées F_I.

1.2.2 Analyse des forces en présence et simplifications

Toutes les forces présentées ci-dessus (Eqs. 1.1) agissent sur le mouvement d'une particule isolée. Cependant, des précautions sont à prendre pour utiliser un tel système : chacune de ces forces intervient à une échelle spatiale qui lui est propre. Plus simplement, l'hydrodynamique est un phénomène macroscopique alors que les interactions entre particules ou particule-paroi jouent un rôle important seulement à l'échelle microscopique. Cette remarque conduit à souligner la séparation des échelles spatiales inhérentes au système 1.1. En effet, la traînée, les forces extérieures ainsi que l'agitation brownienne agissent à l'échelle de la particule, alors que les forces d'interactions F_I agissent à une échelle moléculaire.

Il apparaît alors clairement que chacun de ces phénomènes impose un temps d'observation Δt maximum admissible afin de ne pas être filtré. En effet, si le phénomène est observé à des intervalles de temps plus grands que son temps caractéristique physique, il est évident que la modélisation ne le captera pas. Aussi, nous admettons naturellement que plus l'échelle spatiale du phénomène observé est petite, plus son temps physique d'exécution est rapide. En d'autres termes, si l'on veut prendre en compte tous ces phénomènes à la fois, le plus petit et donc le plus rapide de ces phénomènes impose son temps d'observation aux autres.

Cette différence entre les petites et les grandes échelles impose ainsi des choix dans la modélisation suivant le domaine physique que l'on veut privilégier. Pour la mécanique des fluides, nous choisissons d'observer à son échelle physique (spatiale et temporelle) l'hydrodynamique des particules et nous allons par conséquent modéliser les interactions qui relèvent de la chimie. En première approche, les forces de portance et la gravité sont négligées. Même si la gravité peut être incluses dans F_{ext}, le traitement de la portance est plus complexe. En effet, son expression est dépendante de l'état de la particule à chaque instant, autrement dit de $\mathbf{X_p}(t)$ et $\mathbf{U_p}(t)$. Son expression reviendrait à une expression similaire à celle de la force de traînée avec un temps caractéristique différent. Ainsi, à partir des équations de Langevin (Eqs. 1.1) nous retenons le système suivant en distinguant F_p^i la force d'interaction du champ de particules sur la particule considérée et F_w^i celle relative aux interactions entre la particule et la paroi. Dans ce contexte, le système d'équations à résoudre s'écrit :

$$\begin{cases} d\mathbf{X_p}(t) = \mathbf{U_p}(t)dt, \\ d\mathbf{U_p}(t) = \left[\dfrac{\mathbf{U_s}(t) - \mathbf{U_p}(t)}{\tau_p} + \dfrac{F_{\text{ext}}}{m_p} + \dfrac{F_p^i + F_w^i}{m_p} \right] dt + (B \cdot \mathbf{I}) d\mathbf{W}_t. \end{cases} \tag{1.2}$$

Le terme $\frac{\mathbf{U_s}(t)-\mathbf{U_p}(t)}{\tau_p}$ modélise la force de traînée d'une particule, avec $\mathbf{U_s}(t) = \mathbf{U}_{\text{fluide}}(\mathbf{X_p}(t), t)$ la vitesse du fluide à la position de la particule. Le temps de relaxation de la particule τ_p représente le temps caractéristique que met une particule à répondre aux sollicitations du milieu fluide environnant. Son expression générale est la suivante :

$$\tau_p = \frac{\rho_p}{\rho_f} \frac{4d_p}{3C_D|\mathbf{U}_r|}, \tag{1.3}$$

avec C_D le coefficient de traînée, une fonction non-linéaire du nombre de Reynolds particulaire $Re_p = d_p|\mathbf{U}_r|/\nu_f$, où $\mathbf{U}_r(t) = \mathbf{U}_p(t) - \mathbf{U}_s(t)$ est la vitesse relative instantanée entre les phases

dispersée et continue. Dans le régime de Stokes ($Re_p \ll 1$) souvent valable pour les petites particules, le temps de relaxation de la particule est donné par l'expression suivante :

$$\tau_p = \frac{\rho_p}{\rho_f} \frac{d_p^2}{18\nu_f}, \tag{1.4}$$

avec ρ_p et ρ_f les masses volumiques respectives des particules et du fluide. Le diamètre d'une particule est noté d_p et ν_f est la viscosité cinématique du fluide. Le mouvement brownien est modélisé par le terme $(B \cdot \mathbf{I})d\mathbf{W}_t$, $\mathbf{I}$ désignant simplement la matrice identité. Le coefficient de diffusion B pour le mouvement brownien est issu de l'expression de la variance sur la vitesse d'une particule à l'équilibre thermique sous la seule influence de la force brownienne. Comme décrit dans l'annexe A, où k_B est la constante de Boltzmann et θ est la température du milieu fluide, ce coefficient vaut :

$$B = \sqrt{\frac{2k_B\theta}{m_p\tau_p}}. \tag{1.5}$$

dW_t est l'accroissement du processus de Wiener, noté généralement W_t. C'est le processus aléatoire qui permet la modélisation de phénomènes physiques aléatoires, tel que l'est par nature le mouvement brownien.

Alors que la partie hydrodynamique du système 1.2 est simulée à l'échelle de temps et de longueur de la mécanique des fluides, un modèle doit être choisi pour exprimer les forces d'interactions F_p^i et F_w^i.

1.2.3 La modélisation des interactions par la théorie DLVO

La modélisation des interactions particule-particule et particule-paroi a été étudiée par Israelachvili (1991) qui reprend en détail dans ce livre la théorie appelée DLVO, établie par Derjaguin et Landau (1941) et Verwey et Overbeek (1948). Le potentiel DLVO permet la modélisation des effets de compétition entre les forces d'interactions électrostatiques, qui sont entre autre issues du modèle de double couche (Annexe B), et les forces d'interactions entre dipôles dénommées habituellement forces de London-van der Waals. Ces dernières sont de natures purement attractives alors que les forces électrostatiques peuvent être attractives (dipôles de signes opposés) ou répulsives (dipôles de même signes).

Sur la figure 1.1, tirée de Israelachvili (1991), apparaît clairement la somme des deux potentiels précités dans le cas de dipôles de même signe (*i.e.* dans le cas de particules de même nature). Elle met en évidence l'existence d'une barrière d'énergie qui va modérer l'énergie cinétique des deux particules susceptibles d'entrer en collision. La valeur du potentiel DLVO est indiquée en fonction de la distance séparant les deux surfaces chargées, qui peuvent être deux particules sphériques ou une particule et une paroi plane. Sur cette figure, la courbe en pointillé dans la partie positive des ordonnées représente la répulsion du potentiel d'interaction électrostatique, alors que la courbe en pointillé dans la partie négative des ordonnées représente l'attraction des interactions de London-van der Waals. La courbe en trait plein représente la somme de ces deux potentiels d'interactions. Cette représentation met en évidence de manière qualitative l'apparition de la barrière d'énergie, qui correspond au maximum de la courbe totale.

C'est ainsi qu'entre deux sphères de rayons $r_{p,1}$ et $r_{p,2}$, ayant une distance de séparation D entre leurs surfaces respectives, que le potentiel d'interaction attractif de London-van der

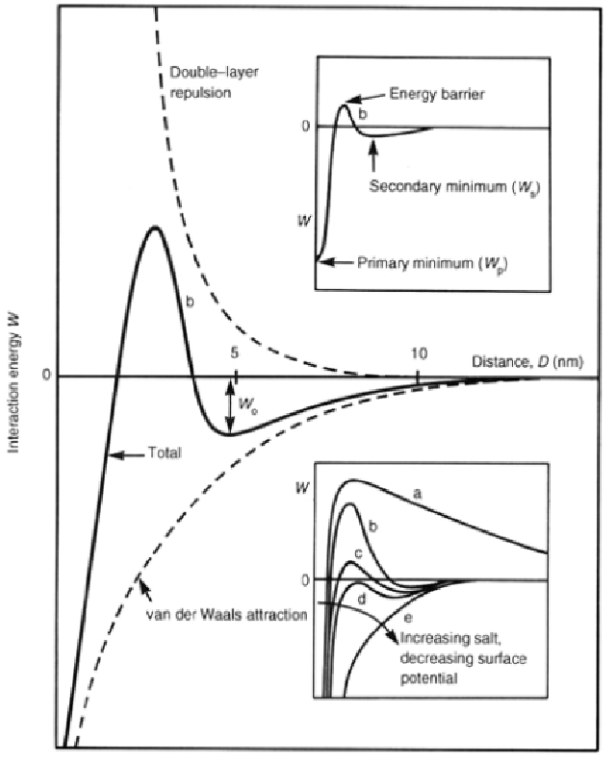


FIGURE 1.1 – Représentation du potentiel DLVO - Israelachvili 1991.

Waals, noté V_A, est donné par :

$$V_A(D) = -\frac{A_{12}}{6D}\frac{r_{p,1}r_{p,2}}{r_{p,1}+r_{p,2}}. \tag{1.6}$$

Entre une sphère de rayon r_p et un plan, ce même potentiel d'interaction attractif (London-van der Waals) vaut :

$$V_A(D) = -\frac{A_{12}r_p}{6D}. \tag{1.7}$$

La grandeur A_{12} est la constante d'Hamaker qui lorsqu'elle est connue, permet de calculer cette énergie d'interaction. L'expression théorique de cette constante est :

$$A_{12} = \pi^2 n_1 n_2 C_{12}, \tag{1.8}$$

avec n_1 et n_2 respectivement le nombre de molécules par unité de volume pour des particules notées 1 et 2 donnés par : $n_i = \mathcal{N}_A m_p^i / M^i_{\text{molaire}}$ (pour $i = 1, 2$) avec $\mathcal{N}_A = 6,0221415 \times 10^{23}$ le nombre d'Avogadro. C_{12} est une constante dépendante des caractéristiques polaires des particules 1 et 2, dont la valeur est de l'ordre de $10^{-77}\ Jm^6$ selon DiMeglio (1998). Toujours selon la même source, la constante d'Hamaker A_{12} a une valeur qui croît avec la polarisabilité des molécules, allant de $0,1$ à $2 \times 10^{-29}\ J$ pour les hydrocarbures et de 10 à $20 \times 10^{-20}\ J$ pour les métaux. Ces valeurs sont des ordres de grandeurs mais doivent être définies précisément pour chaque contexte physique.

D'autre part, un second potentiel d'interaction intervient dans le calcul du potentiel de la théorie DLVO : celui dont dérivent les forces électrostatiques, noté V_R. Ce dernier, d'expression plus complexe que celui de London-van der Waals, fait intervenir des notions de chimie particulaire qui n'ont pas besoin d'une étude approfondie pour notre cas, comme par exemple la distribution de charges électriques surfaciques sur une particule et la notion de potentiel de double couche (Annexe B). Cependant, cette contribution des forces électrostatiques dans l'interaction particule-particule ou particule-paroi peut, contrairement au potentiel de London-van der Waals, être de nature répulsive entre des entités chargées de même signe notamment.

Dans notre cas, toutes les surfaces sont de même nature donc l'expression du potentiel issu des attractions électrostatiques est exclusivement répulsif et il est donné par :

$$V_R(D) = \frac{64 n_0 k_B \theta}{\kappa^{-1}} \gamma^2 \exp\left(-\frac{D}{\kappa^{-1}}\right), \tag{1.9}$$

dans lequel n_0 est la concentration ionique de la solution, $k_B\theta$ est l'énergie d'agitation thermique et κ^{-1} est la longueur de Debye ($\kappa^{-1} = 0,96\mu m$ dans le cas de l'eau pure). Le terme γ représente une constante dont le calcul dépend du potentiel à la surface ϕ_0 :

$$\gamma = \frac{\exp(e\phi_0/2) - 1}{\exp(e\phi_0/2) + 1}, \tag{1.10}$$

avec $e = 1,602176487 \times 10^{-19} C$ la charge élémentaire.

Le potentiel DLVO total $W_{\text{DLVO}}(D)$ est donné par la somme du potentiel de London-van der Waals et du potentiel électrostatique : $W_{\text{DLVO}}(D) = V_A(D) + V_R(D)$. Les forces d'interactions qui en dérivent sont $F_I = -\frac{\mathrm{d}W_{\text{DLVO}}(D)}{\mathrm{d}D}$.

Pour résumer, si on note W_p le potentiel DLVO d'interaction entre deux sphères de rayon $r_{p,1}$ et $r_{p,2}$, et W_w celui entre une sphère de rayon r_p et une paroi plane, alors on obtient :

$$W_p(D) = \frac{64 n_0 k_B \theta}{\kappa^{-1}} \gamma^2 \exp\left(-\frac{D}{\kappa^{-1}}\right) - \frac{A_{12}}{6D} \frac{r_{p,1} r_{p,2}}{r_{p,1} + r_{p,2}}, \tag{1.11}$$

$$W_w(D) = \frac{64 n_0 k_B \theta}{\kappa^{-1}} \gamma^2 \exp\left(-\frac{D}{\kappa^{-1}}\right) - \frac{A_{12} r_p}{6D}. \tag{1.12}$$

Les forces qui en dérivent F_p^i et F_w^i s'écrivent alors :

$$F_p^i(D) = -\frac{64 n_0 k_B \theta}{\kappa^{-2}} \gamma^2 \exp\left(-\frac{D}{\kappa^{-1}}\right) + \frac{A_{12}}{6D^2} \frac{r_{p,1} r_{p,2}}{r_{p,1} + r_{p,2}}, \tag{1.13}$$

$$F_w^i(D) = -\frac{64 n_0 k_B \theta}{\kappa^{-2}} \gamma^2 \exp\left(-\frac{D}{\kappa^{-1}}\right) + \frac{A_{12} r_p}{6D^2}. \tag{1.14}$$

Par ailleurs, il faut noter l'existence d'autres forces d'interactions particule-particule ou particule-paroi qui peuvent intervenir lors de l'agglomération, telles que les forces hydrodynamiques agissant à très petite échelle spatiale, dénommées forces hydrophobes, et les forces induisant un moment aux particules habituellement appelées forces stériques. Nous supposerons dans un premier temps que ces forces sont d'importance secondaire par rapport aux forces dérivées du potentiel DLVO. Surtout, ces dernières agissent contre le phénomène d'agglomération avec une influence bien moindre que les effets de la turbulence et de l'agitation thermique, ce qui

justifie de les négliger dans un premier temps.

Il faut bien noter une caractéristique importante relative à la portée des forces exposées ici. Les forces d'interactions issues de la théorie DLVO ne sont pas négligeables à très faible portée. Il devient primordial de les considérer lorsque la distance qui sépare deux particules est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres. Au delà de cette limite, leur action est négligeable et donc leur prise en compte n'est pas nécessaire. Cette importance relative à la distance d'application de telles forces est à considérer, notamment dans la modélisation et plus encore dans l'application des modèles dans les simulations numériques.

Les expressions de ces forces déduites de la théorie DLVO sont applicables à une échelle très inférieure aux échelles spatiales et temporelles caractéristiques des simulations de mécanique des fluides. La grandeur pertinente à cette échelle est la barrière d'énergie qui entre en compétition avec l'énergie cinétique des partenaires de collision. Ces deux énergies doivent donc être comparées.

1.2.4 Le système d'équations retenu

Il faut inclure cette modélisation des forces d'adhésion dans le contexte d'un écoulement diphasique dispersé turbulent. Concrètement, la modélisation de la force DLVO en tant que force d'interaction appliquée sur une particule ne peut pas être utilisée directement dans le suivi lagrangien comme présenté à la Section 1.2.3. En effet, la distance D à partir de laquelle ces forces deviennent négligeables est pour des colloïdes de l'ordre de $0,1$ micron. Ainsi, une simulation d'un code turbulent euléro-lagrangien doit avoir une résolution spatiale bien plus petite que le micron pour ne pas filtrer ces forces d'interactions. Il est impensable de nos jours d'abaisser à un tel niveau la résolution spatiale d'une simulation d'écoulement fluide-particule, en raison du coût total en calcul numérique que cela induit.

La proposition qui est faite ici est de simuler les forces hydrodynamiques par un code de calcul euléro-lagrangien puis d'ajouter un traitement annexe de l'agglomération. En reprenant une modélisation déjà utilisée dans les simulations lagrangiennes pour la déposition, le traitement consiste en : après avoir détecté une collision entre deux particules ou entre une particule et la paroi, la barrière d'énergie tirée de la théorie DLVO est comparée à l'énergie cinétique relative des deux partenaires de collision (Minier, 2006; Guingo, 2011). Notant cette barrière $W_{\text{DLVO}}^{\text{max}}$ et l'énergie cinétique relative E_C^{rel} de deux particules (dont le calcul est détaillé dans l'Annexe C), la règle appliquée pour conduire ou non à une agglomération est :

- si $W_{\text{DLVO}}^{\text{max}} > E_C^{\text{rel}}$, alors la collision entraîne un rebond,
- sinon $W_{\text{DLVO}}^{\text{max}} < E_C^{\text{rel}}$, alors la collision entraîne une adhésion.

Ce choix de modélisation semble le plus adapté pour étudier l'agglomération à partir de colloïdes dans un écoulement turbulent. En effet, le coût des simulations numériques ne se verra pas augmenté par ce traitement et les phénomènes d'agglomérations pris en compte (la théorie DLVO) semblent être suffisants pour une première approche. Il est facile de noter que l'influence d'un tel traitement peut également convenir à des particules plus grosses : il s'effacera naturellement dès lors que les particules deviendront très inertielles. En effet, dans ce cas limite les énergies cinétiques seront très grandes devant les barrières d'énergies DLVO.

Concrètement, dès lors que les forces d'interactions sont modélisées par la théorie DLVO (Derjaguin et Landau, 1941; Verwey et Overbeek, 1948) et traitées numériquement par la mé-

thode énoncée ci-dessus, le système résolu numériquement se ramène, en négligeant les forces extérieures, à :

$$\begin{cases} d\mathbf{X_p}(t) = \mathbf{U_p}(t)dt, \\ d\mathbf{U_p}(t) = \left[\dfrac{\mathbf{U_s}(t) - \mathbf{U_p}(t)}{\tau_p}\right] dt + (B \cdot \mathbf{I})d\mathbf{W}_t + \text{ Traitement de agglomération,} \end{cases} \tag{1.15}$$

Ce système est un système d'équations différentielles stochastiques. À la différence d'un système d'équations différentielles ordinaires, il nécessite des précautions quant à l'intégration temporelle des termes stochastiques.

1.3 L'intégration temporelle des équations du mouvement

Pour bien comprendre les différences fondamentales entre l'intégration d'équations différentielles ordinaires (dites de Riemann-Stieltjes) et l'intégration d'équations différentielles stochastiques, certains pré-requis mathématiques sont nécessaires. Le processus de Wiener modélise une marche aléatoire et les règles de bases du calcul des intégrales stochastiques selon Itô (Itô et Henry P. McKean, 1965) sont utilisées. Ces notions sont appliquées aux équations de Langevin retenues (Eqs. 1.15) comme l'ont présenté Minier et Peirano (2001). Une brève description de ces outils mathématiques, nécessaire à la bonne compréhension de cette section, est donnée en Annexe E.

Après une présentation des différents régimes de déplacements que nous allons rencontrer en simulant le mouvement des colloïdes dans un écoulement turbulent, le schéma numérique que nous utilisons est détaillé. Nous entamons une discussion importante sur la modélisation du champ fluide, afin qu'elle reste compatible avec notre représentation.

1.3.1 Les régimes de déplacement : balistique et diffusif

Le déplacement d'une particule dans le référentiel d'une simulation peut être de plusieurs natures, en fonction des modèles d'évolution choisis et de la nature physique des phénomènes observés. Nous distinguons deux régimes de déplacements, qui correspondent à deux cas limites : le *régime balistique* et *le régime diffusif*.

Dans le régime balistique, le mouvement d'une particule sur un pas de temps est considéré comme rectiligne, comme illustré sur la figure 1.2-(a). L'hypothèse faite dans ce cas correspond à considérer les paramètres influents de la simulation comme constants entre deux instants d'observations t et $t + \Delta t$. C'est acceptable dès lors que les variations du champ fluide durant Δt sont faibles voir nulles. De ce fait, la particule est insensible aux sollicitations du fluide sur Δt, qui doit de fait, être très petit devant le temps de réaction des particules à ces sollicitations τ_p (Section 1.2.2). Par conséquent, nous pouvons considérer que la particule se déplace de manière rectiligne lorsque $\Delta t \ll \tau_p$. Ce régime de déplacement, appelé *régime balistique*, correspond ainsi à utiliser les règles de la mécanique déterministe.

Dans le régime diffusif, une particule ne se déplace plus de manière rectiligne mais suivant un processus de diffusion. À l'inverse du régime balistique qui s'exprime de manière déterministe, un tel processus est une grandeur aléatoire qui se définit en terme de statistiques. Le

meilleur exemple d'un processus de diffusion pur est le mouvement brownien. Ce type de comportement est observé lorsque le moteur du déplacement d'une particule est observé à une échelle temporelle bien plus grande que son temps de relaxation, comme c'est le cas pour le mouvement brownien. Une illustration qualitative d'un déplacement diffusif sur un pas de temps est donné sur la figure 1.2-(b). Ainsi, nous pouvons considérer que la particule se déplace de manière diffusive lorsque $\Delta t \gg \tau_p$. Une telle représentation du déplacement d'un ensemble de particules nécessite d'énormes précautions dans la manipulation de $\mathbf{X_p}(t)$, puisque les règles de la mécanique déterministe ne sont plus valables. Par construction, la trajectoire d'une particule dans le régime diffusif est à placer dans le domaine statistique.

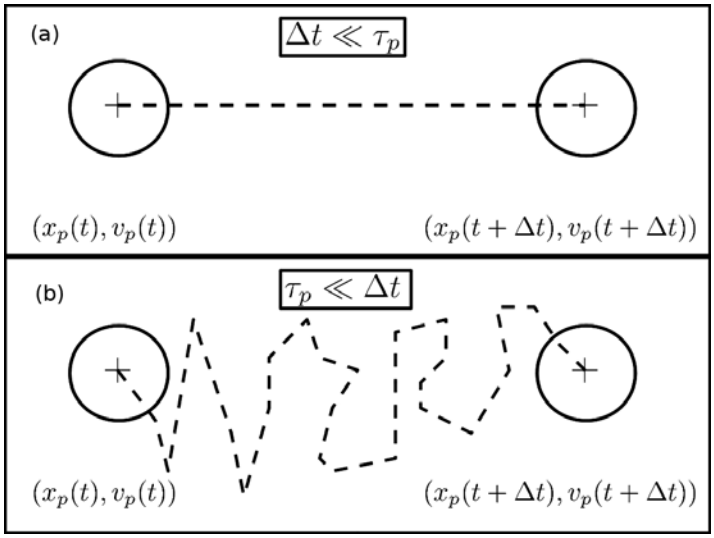


FIGURE 1.2 – Illustration qualitative des régimes de déplacements balistique (a) et diffusif (b) sur un pas de temps.

Le cas de particules colloïdales transportées par un fluide turbulent fait intervenir l'un et l'autre des deux régimes présentés ici. Pour un pas de temps fixé, par la résolution du champ fluide par exemple, les plus petites et donc les moins inertielles des particules vont se trouver dans le régime de déplacement diffusif, alors les colloïdes les plus lourds vont se déplacer de manière rectiligne, dans le régime balistique. Le système d'équations de Langevin (Système 1.15) choisi prend naturellement en compte ces deux régimes de déplacement dans le cas continu. Il faut maintenant utiliser une discrétisation adaptée à ces caractéristiques de la phase dispersé, pour la simulation numérique.

La discrétisation temporelle doit être adaptée à la physique du phénomène d'agglomération qui implique de traiter des particules dans une gamme de tailles très différentes. Leurs inerties jouant, des régimes de déplacements très différents sont à prendre en compte : balistique, diffusif, et dans le cas le plus fréquent un mélange des deux.

1.3.2 Discrétisation temporelle des équations de mouvement

Plusieurs méthodes sont à notre disposition pour utiliser les équations de Langevin (Eqs. 1.15) à des fins de simulation numérique. L'étape essentielle est la discrétisation de ces équations

d'évolution, afin d'exprimer $\mathbf{X_p}(t+\Delta t)$ et $\mathbf{U_p}(t+\Delta t)$ à partir de leurs valeurs au temps t. Cela permet de connaître le vecteur d'état d'une particule $\mathbf{Z_p} = \{\mathbf{X_p}, \mathbf{U_p}\}$ à des intervalles de temps discrets de longueur Δt.

Une méthode simple pour le suivi de telles équations du mouvement est de discrétiser ces équations différentielles stochastiques à l'aide de schémas numériques, tel que le schéma d'Euler par exemple. Le schéma est appliqué aux équations différentielles afin de déduire le vecteur d'état au temps $t+\Delta t$. Ce raisonnement est tout à fait valable mais en fonction du schéma numérique choisi, un critère de stabilité s'impose : un pas de temps maximum est admissible afin d'obtenir la convergence du schéma vers les solutions attendues.

Afin d'éviter les critères de stabilité imposés par le choix d'un schéma numérique, les travaux de Peirano, Chibbaro, Pozorski et Minier (2006) proposent d'intégrer formellement les équations de Langevin (Système 1.15) en suivant les règles du calcul stochastique d'Itô, pour appliquer ensuite un schéma numérique du premier ordre. Le schéma numérique obtenu (Système 1.16) est alors inconditionnellement stable :

$$\begin{cases} \mathbf{X}_p(t+\Delta t) = \mathbf{X}_p(t) + \mathbf{U}_p(t)\tau_p\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right) + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)[\Delta t - \tau_p\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)] \\ \qquad + B\tau_p\sqrt{\Delta t - 2\tau_p\dfrac{(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}})}{(1+e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}})}}\,\zeta_x + B\tau_p^2\dfrac{(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}})^2}{\sqrt{2\tau_p(1-e^{-2\frac{\Delta t}{\tau_p}})}}\,\zeta_v, \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_p(t)e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}} + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}) + B\sqrt{\dfrac{\tau_p}{2}\left(1-e^{-2\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}\,\zeta_v, \end{cases} \tag{1.16}$$

avec ζ_x et ζ_v deux variables Gaussiennes standards, de moyenne nulle et variance unité ($\zeta_{x,v} \sim \mathcal{N}(0,1)$). Une attention particulière doit être portée sur la grandeur $\mathbf{U}_s^{DNS}(t)$ qui se doit d'être connue à l'instant t afin que l'intégration présentée soit respectée. C'est en fait, une donnée. Le lecteur peut se reporter à l'article de Peirano *et al.* (2006) pour de plus amples informations sur l'élaboration et l'utilisation de ce schéma numérique.

En plus du caractère de stabilité inconditionnelle, ce système d'équations possède l'avantage de contenir à lui seul les différents régimes de déplacement : le régime balistique, qui correspond à un déplacement en ligne droite sur un pas de temps ; et le régime diffusif, correspondant au déplacement d'une particule de manière aléatoire dans l'espace. En effet, à la limite des pas de temps très petits devant le temps de relaxation de la particule, $\Delta t \ll \tau_p$, il est facile de montrer qu'un développement de Taylor au premier ordre en temps conduit à :

$$\begin{cases} \mathbf{X}_p(t+\Delta t) = \mathbf{X}_p(t) + \mathbf{U}_p(t)\,\Delta t + o(\Delta t), \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_p(t) + \dfrac{\Delta t}{\tau_p}(\mathbf{U}_s^{DNS}(t) - \mathbf{U}_p(t)) + B\sqrt{\Delta t}\,\zeta_v + o(\Delta t), \end{cases} \tag{1.17}$$

ce qui prouve que le *régime balistique* est atteint. Sur un pas de temps, les particules se déplacent de manière rectiligne et la valeur de la loi de diffusion pour les temps courts (Gardiner, 1985) est retrouvée. En effet, pour des particules partant de $\mathbf{X}_p(0)$ à $t=0$, avec une vitesse initiale aléatoire $\mathbf{U}_p(0)$, nous avons :

$$\langle \mathbf{X}_p^2(\Delta t)\rangle = \mathbf{X}_p(0)^2 + \langle \mathbf{U}_p(0)^2\rangle \Delta t^2, \tag{1.18}$$

qui se traduit en temps continu (tant que $t \ll \tau_p$) par :

$$\langle \mathbf{X}_p^2(t)\rangle = \mathbf{X}_p(0)^2 + \langle \mathbf{U}_p(0)^2\rangle t^2. \tag{1.19}$$

Avec le même schéma numérique, l'autre cas limite correspond à un pas de temps très grand devant le temps de relaxation de la particule. En posant $\Delta t \gg \tau_p$ dans le système 1.16, nous obtenons :

$$\begin{cases} \mathbf{X}_p(t+\Delta t) \simeq \mathbf{X}_p(t) + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)\,\Delta t + B\tau_p\sqrt{\Delta t}\,\zeta_x, \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_s^{DNS}(t) + B\sqrt{\dfrac{\tau_p}{2}}\,\zeta_v, \end{cases} \tag{1.20}$$

ce qui montre que le *régime diffusif* est bien atteint. Sur un pas de temps, le moteur du mouvement de la particule est principalement le processus de Wiener. Il représente les effets aléatoires induits par les collisions des molécules sur la particule suivie. La loi de diffusion aux temps longs (Gardiner, 1985) est obtenue naturellement :

$$\langle \mathbf{X}_p^2(\Delta t)\rangle = \mathbf{X}_p(0)^2 + (B\tau_p)^2\Delta t, \tag{1.21}$$

qui se traduit en temps continu (tant que $t \gg \tau_p$) par :

$$\langle \mathbf{X}_p^2(t)\rangle = \mathbf{X}_p(0)^2 + (B\tau_p)^2 t. \tag{1.22}$$

Il faut remarquer que dans le régime diffusif, le schéma numérique reproduit naturellement le fait que les vitesses des particules sont représentées par la somme de la vitesse du fluide et d'une succession de variables gaussiennes indépendantes, qui prennent en compte les effets cumulés des forces browniennes sur le pas de temps complet. Ceci est vrai uniquement lorsque ces vitesses sont observées à des pas de temps suffisamment grands devant l'échelle de temps physique du phénomène, ici $\Delta t \gg \tau_p$. En exprimant ce cas limite en terme de temps continus, il est possible d'écrire un comportement purement diffusif sur la position des particules (Peirano *et al.*, 2006) :

$$d\mathbf{X}_p(t) = \mathbf{U}_s^{DNS}dt + B\tau_p d\mathbf{W}_t. \tag{1.23}$$

Le point important à noter dans l'utilisation d'un tel schéma numérique (Eqs. 1.16) est sa capacité à traiter le mouvement des particules quel que soit le temps d'observation (décrit ici comme le pas de temps numérique Δt) par rapport au temps de relaxation de la particule considérée (τ_p). Un unique schéma numérique s'adapte et reproduit naturellement aussi bien le régime balistique, pour les particules ayant un temps de relaxation grand devant le pas de temps ($\tau_p \gg \Delta t$), que le régime diffusif, pour les particules ayant un petit temps de relaxation devant le pas de temps ($\tau_p \ll \Delta t$). Le terme de diffusion brownienne s'adapte naturellement à la modélisation de Langevin (1908) aux temps courts (dans le régime balistique) comme aux temps longs (dans le régime diffusif). Le coût numérique supplémentaire induit par la simulation d'une expression plus complexe est négligeable par rapport au gain dû à l'utilisation d'un unique schéma numérique pour une très large gamme de diamètres de particules. Le pas de temps de la simulation n'est plus assujetti à rester plus petit que le plus petit des τ_p du champ de particules.

L'utilisation de ce schéma numérique dans des simulations numériques a été validé en Annexe D en montrant que les statistiques d'une diffusion sont retrouvées dans chaque régime de déplacement.

1.3.3 Note sur la vitesse du fluide vue $\mathbf{U}_s(t)$

Il faut noter quelques précautions sur la simulation du système d'équations 1.16 pour la résolution de l'agglomération. En effet, lorsque deux particules s'agglomèrent, les vitesses du champ fluide au voisinages de celles-ci sont corrélées. Ainsi, nous supposons que $\mathbf{U}_s(t)$ est

connu en tout point de l'espace et à chaque instant.

Il faut alors prêter une attention particulière au modélisations possibles de $\mathbf{U}_s(t)$. Certaines d'entre elles n'obligent pas que deux particules fluides assez proches auront des vitesses corrélées, comme les modélisations stochastiques de la vitesse du fluide vue (Minier et Peirano, 2001), par exemple. En effet, chaque estimation de $\mathbf{U}_s(t)$ pour une particule fluide ne prend pas en compte les valeurs du champ fluide aux alentours. Ce type de modèle, dit *en un point*, considère l'état initial d'une particule fluide pour en déduire l'état final, indépendamment de l'action de ses voisines sur celle-ci durant le pas de temps. Cet aspect n'est pas adapté au traitement des interactions entre les particules car *deux particules voisines entrant en collision doivent avoir un champ fluide alentour cohérent*.

Considérant cela, nous choisissons de résoudre le champ fluide de manière exacte, ce qui sous-entend l'utilisation d'un code de calcul de résolution directe (Direct Numerical Simulation, DNS). Des modèles dit *en deux points* pourraient être imaginés en incluant une corrélation entre deux particules fluides relativement proches. Ils seraient également adaptés au traitement des collisions, mais nous n'avons pas connaissance de l'existence de tels outils.

La résolution du champ fluide par les modélisations eulériennes ou stochastiques ***en un point*** *sont utilisables uniquement pour le suivi d'une particule isolée. L'introduction des interactions particule-particule ou particule-paroi est incompatible avec toute modélisation du champ fluide qui ne serait pas une modélisation* ***en deux points*** *ou, comme nous l'avons choisi, une résolution exacte. En DNS, notre approche qui traite les n particules en même temps correspond à une approche en n points (ou en n particules).*

1.4 Conclusion partielle

La physique du phénomène d'agglomération est décrite et analysée afin de distinguer deux phases d'origines physiques différentes : la détection des collisions et l'adhérence des deux particules. Cette scission permet de distinguer deux modélisations indépendantes, l'une pour le mouvement des particules choisies de type lagrangienne, corrélée avec la détection des collisions ; et l'autre pour les forces physico-chimiques qui conduisent à l'adhérence des particules. Si la détection d'une collision entre deux particules sera développée dans les chapitres suivants, les forces d'adhérence sont issues de la théorie DLVO. Afin d'utiliser cette théorie à l'échelle d'un code de simulation de mécanique des fluides, un potentiel énergétique appelé *barrière d'énergie* est extrait des potentiels DLVO pour être comparé à l'énergie cinétique des deux partenaires de la collision. La modélisation lagrangienne relative au cadre de notre étude est détaillée et affinée. L'agitation brownienne et la force de traînée sont retenues comme les principaux acteurs du mouvement des colloïdes.

Les régimes de déplacement rencontrés dans la simulation numérique du mouvement d'un champ de particules colloïdales, à savoir le régime balistique et le régime diffusif, sont expliqués et leur provenance physique par rapport à l'observation discrète est illustrée. La modélisation choisie prouve sa capacité, à travers l'utilisation du schéma numérique, à traiter l'un ou l'autre de ces régimes de déplacement indépendamment du choix du pas de temps global de la simulation par rapport au temps de relaxation de la particule. En effet, les comportements théoriques observés par Langevin (1908) sont retrouvés. Une remarque importante sur la résolution du champ fluide est soulevée, afin d'éviter tout ambiguïté dans le choix d'une résolution

numérique directe pour obtenir la valeur exacte de la vitesse du fluide en tout point et à chaque instant.

Le point clé dans l'étude de l'agglomération des particules colloïdales est la discrétisation du modèle choisi pour le mouvement. En effet, dans la Section 1.3.2 nous exposons un schéma numérique 1.16 capable de simuler les équations de Langevin 1.15 dans des régimes de déplacements différents, sans aucune contrainte sur le pas de temps et sans souci de stabilité. En effet, nous avons prouvé le bon comportement du schéma numérique dans l'un et l'autre des cas limites rencontrés : le régime balistique et le régime diffusif. En définitive, le schéma numérique choisi est donc compatible avec les deux cas limites $\Delta t \ll \tau_p$ et $\Delta t \gg \tau_p$.

Ce travail doit maintenant être complété par un algorithme de collision lagrangien capable de traiter cette hétérogénéité de diamètres sans un surcoût numérique trop important. Dans un premier temps nous allons décrire la théorie de l'agglomération au sens de Smoluchowski (1917) basée sur des bilans de population. Ainsi, nous pourrons comparer les résultats macroscopiques issus de cette théorie à ceux du cadre qui nous intéresse : ***la résolution lagrangienne exacte*** *de la collision.*

Chapitre 2

Les noyaux d'agglomération

Ce chapitre expose la méthode des "bilans de populations" décrite par Smoluchowski (1917). Capable de résoudre l'agglomération dans des écoulements dispersés de manière statistique, ce traitement macroscopique consiste à résoudre une équation de bilan de population pour donner la distribution en volume ou en diamètre des particules.

2.1 L'équation de bilan de population

Dans de nombreux cas, la résolution exacte de l'agglomération des inclusions transportées dans un écoulement n'est pas nécessaire. Une réponse statistique donnant la distribution en volume (ou en diamètre) des particules peut suffire à résoudre de nombreux problèmes industriels, par exemple lors de phases de filtrage.

Prenons une gamme de particules ayant un volume compris entre v et $v + dv$, la variation du nombre de particules dN sur cette intervalle est modélisée par (Smoluchowski, 1917) :

$$dN = n(v)dv, \tag{2.1}$$

avec $n(v)$ la distribution de particules. Cette équation (Eq. 2.1) est alors appliquée à l'ensemble de la phase dispersée, séparée en différentes classes. Chaque classe est composée de particules ayant le même multiple du volume élémentaire. Dans ce cadre, la notation $i + j = k$ doit être comprise comme une addition des classes i et j, c'est à dire $v_i + v_j = v_k$. Dès lors, l'évolution de la distribution de particules dans une classe de particules dn_k, qui représente la variation de concentration d'aggrégats de volume v_k, est donnée par l'équation de bilan de population (pour l'agglomération) :

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} \beta(v_i, v_j) n_i n_j - n_k \sum_{i=1}^{\infty} \beta(v_i, v_k) n_i, \tag{2.2}$$

avec :

- v_i le volume de la particule i,
- n_i le nombre de particules de diamètre v_i présentes dans l'écoulement (*i.e.* appartenant à la classe i),
- β le noyau d'agglomération tel que $\beta = \Gamma\psi$, avec Γ le taux de collision par unité de temps par unité de volume. ψ représente l'efficacité d'agglomération, c'est-à-dire le pourcentage

de collisions qui conduit à une agglomération. C'est un réel compris entre 0 et 1 tel que $\psi = \frac{\text{nombre d'agglomération}}{\text{nombre de collisions totale}}$.

Cette équation 2.2 s'explique en effectuant le bilan, sur une classe de particules, entre le nombre de particules créées et le nombre de particules perdues. Le nombre de particules créées est représenté par le premier terme $\frac{1}{2}\sum_{i+j=k}\beta(v_i, v_j)n_i n_j$, comme étant la somme des particules provenant de toutes les sous-classes i et j, dont l'agglomération donnera une particule de volume v_k. Dans ce terme, le facteur $\frac{1}{2}$ est nécessaire pour ne pas compter deux fois cette contribution (lorsque $i \to j$ et $j \to i$). Ensuite, il faut déduire le nombre de particules sortant de la classe k pour former des agglomérats dans des classes supérieures. Ceci se traduit par le second terme $-n_k \sum_{i=1}^{\infty}\beta(v_i, v_k)n_i$.

La difficulté dans la résolution de cette équation est d'estimer correctement le taux d'agglomération représentatif des cas physiques. Dans certains cadres théoriques très épurés, ce noyau est connu mais des doutes subsistent dès lors que les écoulements considérés deviennent plus complexes. Il faut également noter la distinction à faire entre le taux de collision, noté Γ, estimé à partir de raisonnements statistiques sur les forces hydrodynamiques et le taux d'agglomération, $\beta = \Gamma\psi$. L'efficacité d'agglomération ψ relève d'études ou d'expériences physico-chimiques sur les mécanismes d'adhésions. Par conséquent, elle est plus difficile à renseigner de manière précise et reste souvent méconnue.

2.2 Les noyaux de collision et d'agglomération

Les noyaux des écoulements gravitaires, cisaillés laminaires, turbulents et browniens sont issus d'études statistiques sur le comportement des particules dans les écoulements du même type. Ils sont référencés dans la littérature (Pearson, Valioulis et List, 1984; Adachi, 1995). Pour simplifier la présentation de ce chapitre, les noyaux de collision et d'agglomération sont confondus considérant que chaque collision entraîne une agglomération ($\psi = 1$).

2.2.1 Gravitaire

Deux particules ayant des inerties différentes auront des vitesses limites de chute différentes dans un fluide au repos. Ainsi, si la phase dispersée est uniquement soumise à la force de la gravité, le taux de collision pour des particules notées i et j (Pearson *et al.*, 1984) est :

$$\beta_{i,j} = \pi(r_{p,i} + r_{p,j})^2 \|\mathbf{U}_{p,j,\text{lim}} - \mathbf{U}_{p,i,\text{lim}}\|, \tag{2.3}$$

avec r_p le rayon d'une particule et $\mathbf{U}_{p,\text{lim}}$ sa vitesse limite de chute.

2.2.2 Écoulement cisaillé

Dans un écoulement cisaillé unidirectionnel, les particules peuvent entrer en collision en fonction de leurs masses et de la valeur du gradient de vitesse, comme l'illustre la figure 2.1. Dans le cadre d'un transport des particules uniquement dû à ce gradient de vitesse, le taux de collision pour des particules notées i et j (Pearson *et al.*, 1984) est :

$$\beta_{i,j} = \frac{4}{3}(r_{p,i} + r_{p,j})^3 S, \tag{2.4}$$

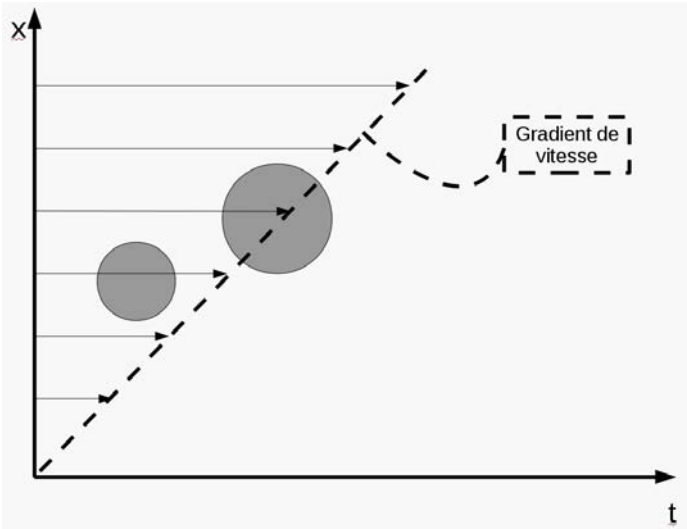


FIGURE 2.1 – Représentation schématique de l'agglomération dans un écoulement cisaillé.

avec S le gradient de vitesse du fluide dans le sens de l'écoulement.

2.2.3 Turbulent

Dans le cadre théorique d'une turbulence homogène isotrope stationnaire, le noyau de collision est donné par (Saffman et Turner, 1956) :

$$\beta_{i,j} = \sqrt{\frac{8\pi\epsilon}{15\nu_f}}(r_{p,i} + r_{p,j})^3, \tag{2.5}$$

où ϵ désigne le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente et ν_f la viscosité cinématique du fluide. Cette expression (Eq. 2.5) reste valable tant que l'inertie des particules est négligée et pour des particules très petites devant la plus petite échelle spatiale de la turbulence, distribuées uniformément dans le volume considéré. Ceci se traduit par le critère $St \ll 1$ sur le nombre de Stokes St, dont l'expression générale est :

$$St = \frac{2}{9}\left(\frac{\rho_p}{\rho_f}\right)\frac{r_p^2/\nu_f}{\sqrt{\epsilon/\nu_f}}, \tag{2.6}$$

Nous pouvons remarquer que $\sqrt{\epsilon/\nu_f} = \frac{1}{\tau_k}$ représente l'inverse de l'échelle de temps de Kolmogorov.

Dans le cas limite opposé, lorsque $St \gg 1$, la littérature (Abrahamson, 1975) donne l'expression du noyau :

$$\beta_{i,j} = \sqrt{\frac{32\pi}{3}\left(\frac{E_i + E_j}{2}\right)}(r_{p,i} + r_{p,j})^2, \tag{2.7}$$

avec E_i l'énergie cinétique moyenne par unité de masse de la particule i. Cette expression est utilisée lorsque l'écoulement turbulent transporte des particules d'une inertie grande devant l'agitation de la turbulence.

2.2.4 Brownien

Le mouvement brownien est le moteur principal du mouvement des particules de faible inertie. Il trouve son origine dans l'agitation thermique des molécules fluides qui viennent frapper une particule solide de manière aléatoire. Sous ces conditions, il faut distinguer deux régimes d'écoulements différents qui conduisent à des noyaux de collision différents :

- lorsque le diamètre de la particule solide est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des molécules du fluide, l'inclusion se comporte pratiquement comme l'une des molécules du fluide. C'est donc la théorie cinétique des gaz qui donne l'expression du noyau de collision dans un régime que l'on dénomme **régime moléculaire libre** (*i.e.* **free-molecular regime**, indicé **fm**).
- à l'inverse, lorsque le diamètre de la particule considérée est très grand devant le libre parcours moyen des molécules du fluide, l'agitation moléculaire agit comme une force aléatoire sur la particule solide. On peut alors traiter le milieu fluide avec les règles de la mécanique des milieux continus, c'est pourquoi ce régime de déplacement se nomme le *régime continu* (*i.e.* **continuum regime**, indicé **co**).

Le nombre de Knudsen fixe la limite entre le régime moléculaire libre et le régime continu :

$$Kn = \frac{\lambda_m}{d_p} = \frac{\text{libre parcours moyen des molécules du fluide}}{\text{diamètre des particules solides}}. \tag{2.8}$$

Dans l'eau, on peut admettre que le libre parcours moyen des molécules du fluide (λ_m) est d'environ $\lambda_m = 900nm$ alors que dans l'air il vaut $\lambda_m = 67,3nm$. Ainsi, $Kn \lesssim 1$ correspond au régime continu alors que $Kn \gtrsim 50$ correspond au régime moléculaire libre. Dans le cas où $1 \lesssim Kn \lesssim 50$, c'est le régime dit "transitoire" qui décrit le comportement du noyau de collision brownien.

Les valeurs de ces noyaux sont données par (Smoluchowski, 1917) :

$$\beta_{i,j,\text{co}} = \frac{2k_B\theta}{3\mu}\left(\frac{1}{v_i^{1/3}} + \frac{1}{v_j^{1/3}}\right)\left(v_i^{1/3} + v_j^{1/3}\right), \tag{2.9}$$

dans le régime continu et,

$$\beta_{i,j,\text{fm}} = \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{1/6}\left(\frac{6k_B\theta}{\rho_p}\right)^{1/2}\left(\frac{1}{v_i} + \frac{1}{v_j}\right)^{1/2}\left(v_i^{1/3} + v_j^{1/3}\right)^2, \tag{2.10}$$

dans le régime moléculaire libre.

Pour une distribution monodispersée de particules ($v_i = v_j$), l'expression du noyau de collision se simplifie pour devenir :

$$\beta_{\text{co}}^{\text{monodisperse}} = \frac{8k_B\theta}{3\mu}, \tag{2.11}$$

une constante dans le régime continu et :

$$\beta_{\text{fm}}^{\text{monodisperse}} = 4\sqrt{\frac{6k_B\theta d_p}{\rho_p}}. \tag{2.12}$$

dans le régime moléculaire libre.

Bien que les noyaux de collision des cas limites *moléculaire libre* et *continu* soient rigoureusement établis, il est montré dans Trzeciak, Podgórski et Marijnissen (2006) que leurs expressions sont valables uniquement pour des fractions volumiques inférieures à 10%.

Le régime transitoire

Le problème majeur dans l'étude de l'agglomération sous influence brownienne est la discontinuité entre les deux régimes *moléculaire libre* et *continu*. La jonction entre ces deux régimes passe par un régime transitoire, pour lequel $1 \lesssim Kn \lesssim 50$. Dans ce cas, une expression continue du noyau de collision rejoignant ces deux cas limites doit être utilisée. Une première réponse à ce problème est apportée par Dahneke (1983) et la bibliographie fournit des travaux équivalents et complémentaires (Otto, Fissan, Park et Lee, 1997; Otto et Fissan, 1998). Dans le régime transitoire ($1 \lesssim Kn \lesssim 50$) le noyau de collision peut s'écrire :

$$\beta_{i,j,\text{tr}} = \frac{2k_B\theta}{3\mu}\frac{1+Kn_D}{1+2Kn_D+2Kn_D^2}, \tag{2.13}$$

avec Kn_D le nombre de Knudsen particulaire défini par :

$$Kn_D = \frac{4D_{ij}}{\overline{c_{ij}}(r_{p,i}+r_{p,j})}. \tag{2.14}$$

Dans ces expressions :

- $D_{ij} = D_i + D_j$ est la somme des coefficients de diffusion d'Einstein, défini pour une particule i par $D_i = \frac{k_B\theta}{6\pi\mu_f r_{p,i}}$ (Einstein, 1906) ;
- $\overline{c_{ij}} = \sqrt{c_i^2 + c_j^2}$ est la vitesse d'agitation particulaire relative moyenne, avec $c_i^2 = \frac{8k_B\theta}{\pi m_p}$.

La figure 2.2 illustre le comportement de ce noyau modifié pour le régime transitoire.

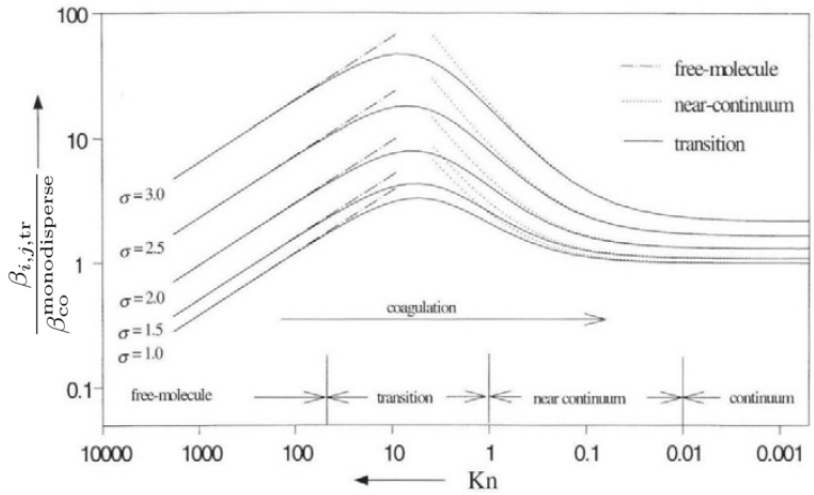


FIGURE 2.2 – Évolution du noyau brownien modifié pour le régime transitoire, σ est l'écart-type de la distribution initiale log-normale des diamètres des particules.

2.3 Nombre de collisions et noyaux dans les simulations

À partir du noyau, il est possible de déduire le nombre d'interactions rencontrées dans une simulation N_{coll} par unité de temps et de volume :

$$N_{\text{coll}} = \Gamma \frac{n(n-1)}{2} \approx \Gamma \frac{n^2}{2}, \tag{2.15}$$

avec Γ le noyau de collision (Pour rappel : $\beta = \Gamma\psi$). n est le nombre de particules total dans le volume de contrôle, l'approximation faite ici est justifiée lorsque n devient très grand. Évidemment, cette expression est valable lorsque le noyau Γ est indépendant du diamètre des particules. Sinon, N_{coll} sera la somme des contributions provenant de chaque diamètre.

Lorsque la phase d'agglomération est résolue de manière exacte, la valeur estimée dans la simulation est N_{coll}. Il suffit alors d'inverser l'équation 2.15 pour exprimer le noyau de collision, noté Γ_e :

$$\Gamma_e = \frac{2N_{coll}L^3}{n(n-1)t}. \tag{2.16}$$

Les dimensions de temps t et d'espace L sont ajoutées, pour un volume d'observation de dimension L^3. Ce noyau estimé peut être comparé au noyau théorique pour valider le bon comportement statistique des algorithmes de collision exacts.

2.4 Conclusion partielle

La méthode de résolution de l'agglomération par bilan de population sur la phase dispersée est décrite afin d'apporter une réponse statistique dans la simulation d'un tel phénomène. Plusieurs noyaux de collision sont exposés, tout comme leurs utilisations dans des simulations exactes, que ce soit pour estimer le nombre de collisions attendues ou pour vérifier la concordance entre le noyau estimé par un calcul numérique et la théorie.

Notre étude doit permettre d'observer les forces d'adhésion, que nous avons choisies comme la concurrence entre l'énergie cinétique relative des deux partenaires de collision et la barrière d'énergie issue de la théorie DLVO. C'est pourquoi notre choix s'oriente naturellement vers la résolution exacte de la collision et de l'agglomération. Néanmoins, les taux de collision de la littérature permettent de vérifier que les algorithmes déterministes que nous allons utiliser convergent vers les bonnes statistiques sur la phase dispersée.

La première étape dans la résolution numérique de notre problématique correspond à l'élaboration d'un algorithme de collision efficace et adapté aux colloïdes. Cet algorithme doit être capable de détecter les collisions et d'identifier les deux partenaires de manière exacte. Nous définissons l'étape de validation de cet algorithme exact par la concordance entre les taux de collision estimés dans les méthodes exactes et ceux issus des études théoriques, exposées dans ce chapitre.

Chapitre 3

Traitement numérique local des collisions

Plusieurs algorithmes existants sont capables de traiter les collisions des particules de manière exacte. Tous utilisent un suivi lagrangien des particules, mais leurs efficacités en terme de coût total de calcul diffèrent suivant les cas physiques étudiés. Bien connu dans les simulations de mécanique des fluides dispersée, le fonctionnement de l'algorithme de détection des collisions par recouvrement est expliqué. Il s'agit de détecter à chaque instant si deux particules se recouvrent dans l'espace. Un autre type d'algorithme de détection, dérivé de la dynamique moléculaire, semble plus adapté à une utilisation sur des particules de très petite taille, comme les colloïdes. Moins répandue pour la collision de particules transportées par un fluide, l'implémentation est d'abord validée sur la théorie cinétique des gaz, dont on connaît les fréquences de collision théoriques. Cet algorithme est ensuite choisi pour traiter les collisions de particules colloïdales soumises au mouvement brownien dans un fluide au repos. Nous pourrons ainsi analyser son utilisation en terme d'efficacité, de cohérence des résultats et de coûts numériques.

3.1 Présentation des algorithmes déterministes existants

3.1.1 L'algorithme par recouvrement

Les algorithmes de détection de collision par recouvrement (*overlapping*) sont très simples à mettre en œuvre. La méthode (Sundaram et Collins, 1996; Chen, Kontomaris et McLaughlin, 1998a) consiste à inclure un test, au début ou à la fin du pas de temps, sur chaque paire de particules pouvant potentiellement entrer en collision. Ce test vérifie que la distance séparant les centres des éventuels partenaires est inférieure à la somme de leurs deux rayons :

$$\|\mathbf{X}_{p,j}(t) - \mathbf{X}_{p,i}(t)\| < (r_{p,i} + r_{p,j}). \tag{3.1}$$

Dans l'affirmative, cette expression montre que les deux particules se chevauchent dans l'espace, et par conséquent que la collision est effective. Ce test est généralement complété par le calcul exact du temps de collision, à la manière décrite dans l'Annexe F. Ce type d'algorithme donne des résultats satisfaisants pour le traitement des collisions dans le contexte physique des écoulements turbulents dispersés (Reade et Collins, 2000; Chen, Kontomaris et McLaughlin, 1998b). Une représentation schématique de cet algorithme est présentée sur la figure 3.1

tirée de la littérature correspondante (Sundaram et Collins, 1996).

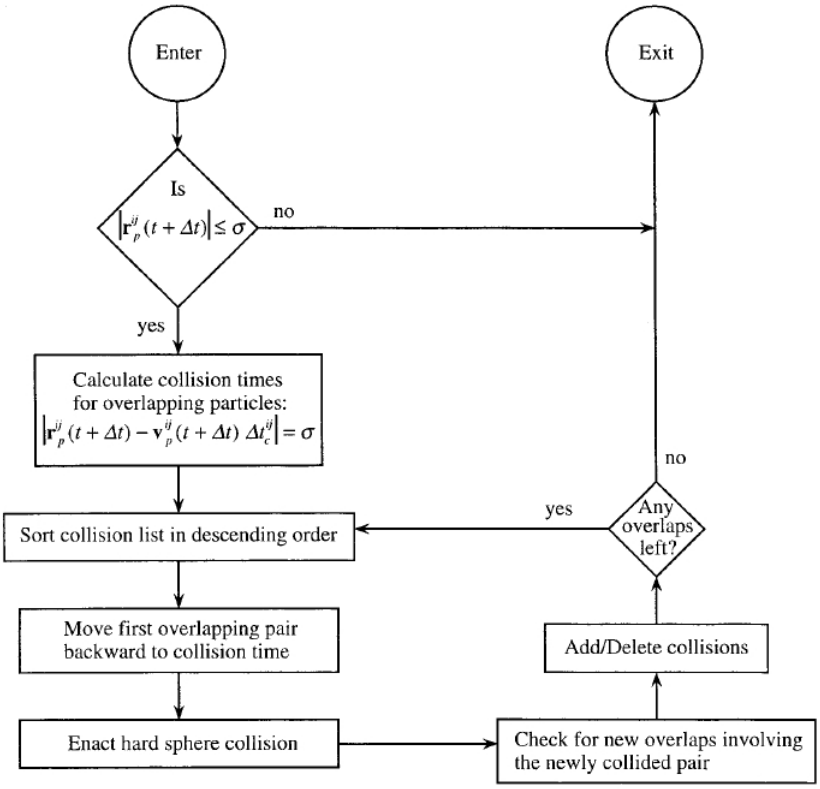


FIGURE 3.1 – Description schématique de l'algorithme par recouvrement - (Sundaram et Collins, 1996).

Une étude remarquable a été menée afin de diminuer la complexité de cet algorithme (Hopkins et Louge, 1991; Laviéville, 1997). La complexité d'un algorithme de collision est directement proportionnelle à son coût total numérique. C'est exactement le nombre d'opérations nécessaires dans chaque pas de temps pour détecter toutes les collisions. Dans une simulation contenant n particules, il existe $\frac{n(n-1)}{2}$ paires possibles, soit autant de collisions potentielles. Sans aucun traitement particulier, un tel algorithme a donc une complexité d'ordre $\mathcal{O}(\frac{n(n-1)}{2}) \sim \mathcal{O}(n^2)$. L'étude précitée (Hopkins et Louge, 1991) réduit cette complexité à $\mathcal{O}(n\log(n))$ en définissant un sous maillage en espace au voisinage d'une particule donnée, ce qui réduit considérablement le nombre de ses voisins, partenaires de collisions éventuels. Cette méthode, très utilisée avec les algorithmes par recouvrements, accroît leur compétitivité en diminuant leur coût numérique.

D'autres études s'attachent à définir au mieux les limites de validité de ces algorithmes. Afin d'être sûr de ne rater aucune collision, les expressions théoriques des distributions des vitesses relatives et des angles de collision sont connues (Sakiz, 1999). Ceci a permis à Wunsch (2009) de calculer empiriquement un critère sur le pas de temps des simulations Δt, qui assure que

ce type d'algorithme détecte exactement toutes les collisions :

$$\frac{< \Delta \mathbf{X}_p >}{d_p} = \frac{3}{2}\sqrt{\pi T_p}\frac{\Delta t_{\text{lim}}}{d_p} = 13\%, \tag{3.2}$$

avec $< \Delta \mathbf{X}_p >$ le libre parcours moyen d'une particule sur un pas de temps et T_p son énergie d'agitation par unité de masse, qui dans le cadre d'un écoulement sous influence brownienne pure par exemple, vaut $T_p = \frac{k_B \theta}{m_p}$. Numériquement, ce critère équivaut à restreindre le déplacement moyen d'une particule sur un pas de temps à 13% de son diamètre. Lorsque la taille des particules devient relativement petite, ceci entraîne une chute du pas de temps, ce qui augmente considérablement le coût numérique des simulations. Par exemple, une particule de $0,1\mu m$ plongée dans un écoulement au repos et uniquement soumise à l'agitation brownienne imposera un pas de temps numérique Δt de l'ordre de $\Delta t_{\text{lim}} = 5,5 \times 10^{-8} s$ (avec $\rho_p = 1000$kg/m$^3, \theta = 300$K). Pour comparaison, cette valeur limite est de 5 ordres de grandeur inférieure à celle obtenue dans les mêmes conditions pour un diamètre $d_p = 10\mu m$ ($\Delta t_{\text{lim}} = 5,5 \times 10^{-3} s$).

Ce type d'algorithme semble inadapté à l'orientation que nous avons donnée à l'étude : le traitement exact des collisions d'un champ de particules colloïdales, d'une gamme de diamètres comprise entre $0,1$ et 2 microns. Il apparaît comme trop coûteux numériquement (Wunsch, 2009).

3.1.2 L'algorithme dérivé de la dynamique moléculaire

En chimie moléculaire, ce type d'algorithme est utilisé pour traiter les chocs entre les molécules au sein d'un gaz. Le nombre d'opérations pour chaque détection de collision est élevé dans un algorithme de type *Dynamique Moléculaire* (*Molecular Dynamics* ou *MD*), ce qui le place comme un algorithme efficace lorsque la collision est un événement rare. Il pourrait être adapté à notre cas d'étude puisqu'il fonctionne correctement sur des molécules d'une taille très inférieure à celle des colloïdes.

Une large description ainsi qu'une analyse numérique approfondie de cet algorithme se trouvent dans Sigurgeirsson *et al.* (2001). La seule hypothèse restrictive à respecter est le déplacement des particules dans le régime balistique, autrement dit de manière rectiligne avec des paramètres constants sur un pas de temps. Pour rappel de la Section 1.3.1, cette hypothèse est respectée dans une simulation numérique lorsque le pas de temps respecte la propriété $\Delta t \ll \tau_p$.

La détection des interactions repose sur des critères géométriques qui concernent les positions, les vitesses et les angles relatifs des deux particules voisines. D'abord, les particules doivent se trouver dans le même voisinage. Ce voisinage, pour un couple de particules i et j, est défini par le cylindre de base de rayon $(r_{p,i} + r_{p,j})$, orienté suivant l'opposé du vecteur vitesse relative $-\mathbf{V_{ij}}$, comme l'illustre la figure 3.2. La longueur du cylindre correspond au déplacement relatif sur un pas de temps $\|\mathbf{V_{ij}}\|\Delta t$. Ensuite, un critère assure que la collision peut avoir lieu dans cet espace prédéfini. Ce critère est basé sur les vecteurs positions et vitesses relatives : si le produit scalaire de ces deux vecteurs est négatif alors les particules se dirigent l'une vers l'autre (Fig. 3.3). Ensuite, le temps exact de la collision ($t + \Delta t_{\text{coll}}$) peut être déterminé de manière exacte, comme expliqué dans l'Annexe F.

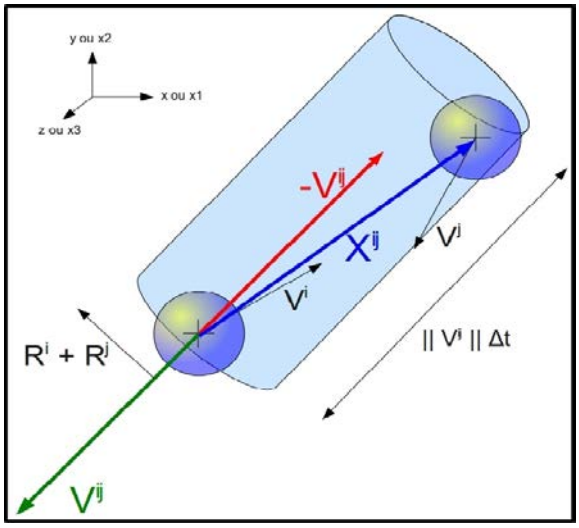


FIGURE 3.2 – Premier critère de détection de l'algorithme de type MD : définition du cylindre de collision.

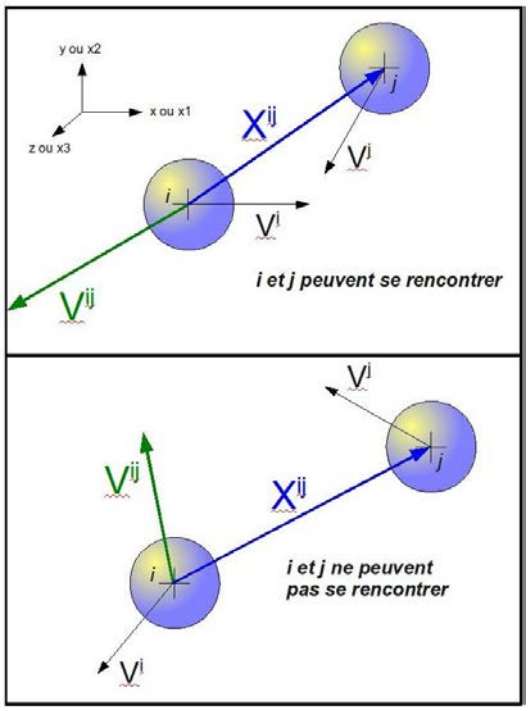


FIGURE 3.3 – Second critère de détection de l'algorithme de type MD : les particules se dirigent-elles l'une vers l'autre ?

La détermination de l'instant exact de la collision $t + \Delta t_{\text{coll}}$ permet dans les simulations d'adapter le pas de temps global Δt afin d'approcher les deux particules jusqu'à leur point

de contact. Il est alors possible de modéliser les phénomènes d'interactions décrits à la Section 1.2.3 au même titre que les collisions élastiques. Le pas de temps global asservi par le traitement de la collision vaut parfois à cet algorithme le nom de "*time-driven algorithm*" (Sigurgeirsson *et al.*, 2001). Une schématisation de ce type d'algorithme est présentée sur la figure 3.4.

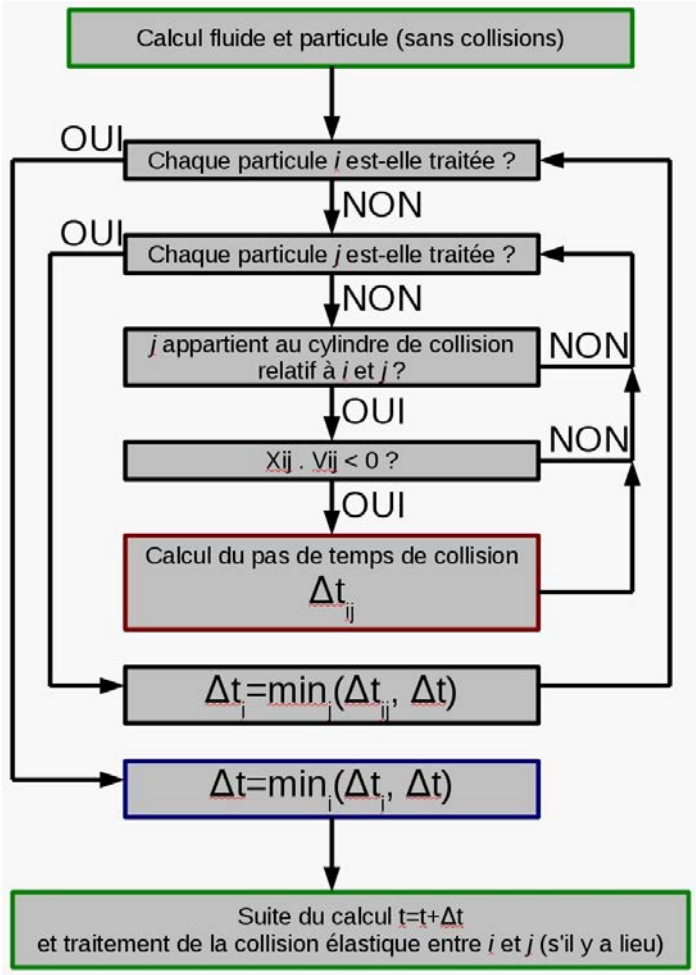


FIGURE 3.4 – Représentation schématique du fonctionnement global de l'algorithme de type MD sur un pas de temps.

Adapté au traitement des collisions dans le domaine submicronique, cet algorithme semble correspondre à nos attentes pour le traitement des collisions entre colloïdes. Il s'agit maintenant de valider son implémentation et de le tester sur le cas de particules colloïdales, pour lesquelles l'agitation brownienne sera le moteur principal.

3.2 Validation numérique de l'algorithme dérivé de la dynamique moléculaire

L'implémentation de cet algorithme dans un code de calcul mérite d'être validée par des calculs tests, du fait de la complexité de la méthode. La démarche qui nous semble la plus naturelle consiste à valider en premier lieu le code sur un cas test de la théorie cinétique des gaz, domaine idéal de la dynamique moléculaire. Ensuite, l'algorithme sera utilisé dans le cadre d'un écoulement représentatif de l'agglomération des colloïdes : celui de particules submicroniques dans un fluide au repos agitées par les forces aléatoires browniennes. Comme nous l'avons expliqué dans la Section 2.4, nous considérons un algorithme comme valide lorsqu'il réussit à calculer les taux de collision théoriques décrits dans le Chapitre 2.

3.2.1 La théorie cinétique des gaz

Cette simulation doit retranscrire la dynamique moléculaire à l'origine de la pression au sein d'un gaz. Les molécules du gaz se déplacent dans le vide, sous l'effet de l'énergie thermique, et les collisions qu'elles rencontrent définissent la pression du gaz comme la grandeur $P = \frac{nk_B\theta}{L^3}$, avec $\frac{n}{L^3}$ la concentration en molécule dans le volume L^3.

La modélisation

La physique représentée est celle des molécules d'un gaz parfait, modélisées par des sphères dures, qui se déplacent dans le vide. Cela signifie que la vitesse de ces molécules est constante dans le temps et qu'aucune force extérieure ne vient perturber leur déplacement, comme la force de traînée par exemple. Aussi, la viscosité est nulle et donc ces molécules ont un temps de relaxation infini. Le modèle de déplacement est intégré par un schéma d'Euler d'ordre 1 pour donner :

$$\begin{cases} \mathbf{X_p}(t+\Delta t) = \mathbf{X_p}(t) + \mathbf{U_p}(t)\Delta t, \\ \mathbf{U_p}(t) = \text{cste.} \end{cases} \tag{3.3}$$

Ceci montre que le régime de déplacement pour chaque simulation est le régime balistique pur puisque nous aurons, dans tous les cas, $\Delta t \ll \tau_p$ (Section 1.3.1). Néanmoins, la vitesse constante de chaque particule doit respecter une distribution de Maxwell, qui pour chacune des directions de l'espace ($l = 1, 2, 3$) prend la forme (Reif, 1965) :

$$F(U_{p,l}) = \sqrt{\frac{m_p}{2k_B\theta}} \exp\left(-\frac{m_p U_{p,l}^2}{2k_B\theta}\right). \tag{3.4}$$

Cette distribution est illustrée sur la figure 3.5.

Le point crucial dans cette représentation est relatif à l'étude des collisions. En respectant cette dynamique, il apparaît que les trajectoires rectilignes des particules ne sont modifiées que par les collisions. La fréquence de collision théorique est alors donnée par (Reif, 1965) :

$$f_c = \frac{n}{L^3}\pi d_p^2 \sqrt{\frac{16k_B\theta}{\pi m_p}}\frac{n}{2}, \tag{3.5}$$

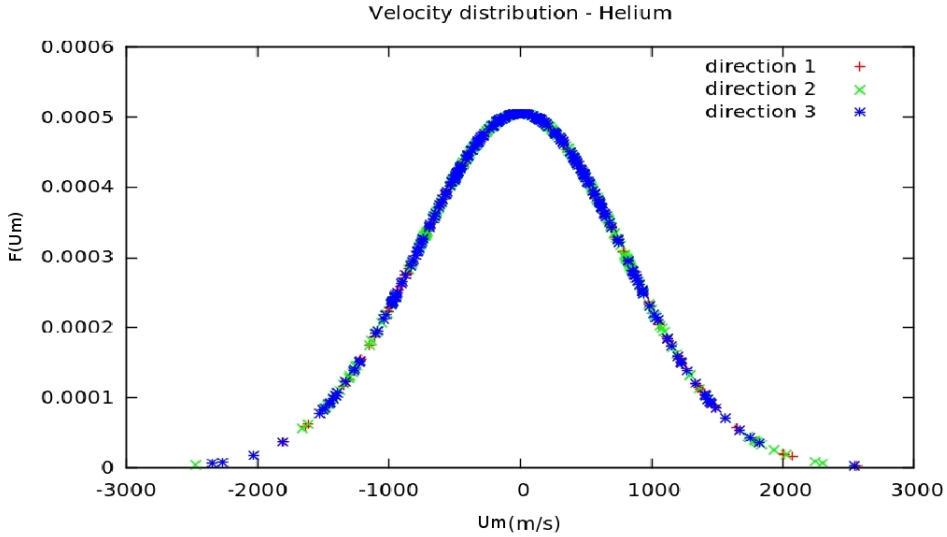


FIGURE 3.5 – Distribution de Maxwell pour les vitesses initiales des molécules d'Hélium pour chacune des directions de l'espace.

et de fait, le noyau de collision théorique est (Section 2.3) :

$$\Gamma_{\text{th}} = 2n^2 d_p^2 \sqrt{\frac{\pi k_B \theta}{m_p}}. \tag{3.6}$$

Ce noyau de collision théorique est calculé de manière exacte pour les gaz parfaits, ce qui permet d'établir des simulations sur plusieurs molécules différentes afin de prouver l'indépendance en diamètre et en pas de temps des simulations.

Les simulations numériques

Dans la théorie cinétique des gaz, les molécules des gaz parfaits sont considérées comme des sphères dures. La meilleure approximation existante pour cette modélisation est de représenter ces molécules comme des sphères de rayon r_{VdW}, le rayon de Van der Waals. Ce rayon définit la sphère la plus petite incluant entièrement la molécule choisie. Le tableau 3.1 expose les caractéristiques des gaz parfaits testés.

La variété des diamètres disponibles pour les tests permet de montrer que l'algorithme implémenté est indépendant à cette caractéristique sur la phase dispersée. En effet, le taux de collision estimé par la simulation adimensionnée par le taux de collision théorique (Eq. 3.6) évolue autour de l'unité, comme le montre la figure 3.6. Les tests sont effectués avec $n = 250$ molécules dans un volume de contrôle de dimension L^3 avec $L = 10nm$ à une température $\theta = 300K$. Les collisions sont des collisions élastiques parfaites. Le pas de temps de cette simulation est choisi de sorte que le libre parcours moyen d'une molécule sur un pas de temps, donné par $\overline{U_m}\Delta t$ (avec $\overline{U_m}$ la vitesse moyenne des molécules), reste très inférieur à la dimension caractéristique du volume de contrôle L. De fait, avec $\overline{U_m} = \sqrt{\frac{8k_B\theta}{\pi m_p}} m.s^{-1}$ (Reif, 1965), le pas de temps global utilisé pour démontrer l'indépendance en diamètre est $\Delta t = 10^{-14}s$. Il

TABLEAU 3.1 – Grandeurs caractéristiques des gaz parfaits testés dans la détection des collisions de la théorie cinétique.

Gaz	Masse molaire (g)	Rayon de Van der Waals (pm)
Helium	4	140
Neon	20	154
Argon	40	188
Krypton	83,3	202
Xenon	131,3	216

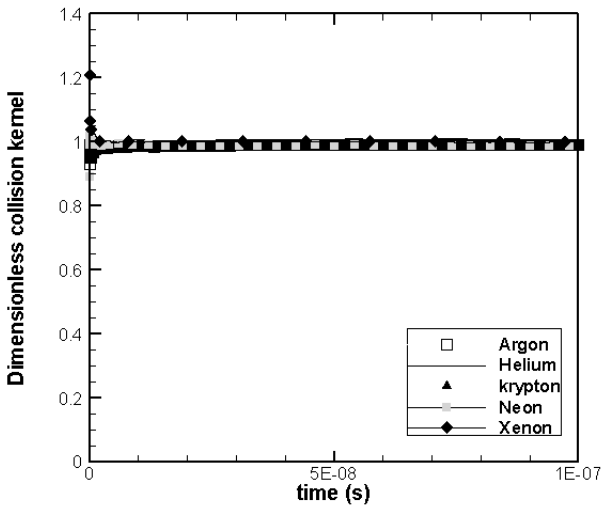


FIGURE 3.6 – Noyau de collision adimensionné en fonction du temps pour différents gaz parfaits - indépendance en diamètre de l'algorithme de type MD.

remplit toutes les conditions requises.

Il s'agit maintenant de montrer que le choix de ce pas de temps global pour la simulation, n'affecte en rien la détection des collisions. Pour ce faire, le pas de temps de la simulation est fixé à plus ou moins un ordre de grandeur par rapport au pas de temps précédemment choisi, qui était $\Delta t = 10^{-14} s$. Dans les mêmes conditions de simulation et pour des pas de temps globaux différents, la figure 3.7 démontre que l'implémentation n'est pas affectée par ce choix.

Un fois l'implémentation validée sur le cas balistique pur correspondant à la théorie cinétique des gaz, nous pouvons à présent tester son efficacité dans un cadre représentatif de l'agglomération que l'on étudie, celui de particules colloïdales soumises à un mouvement brownien pur.

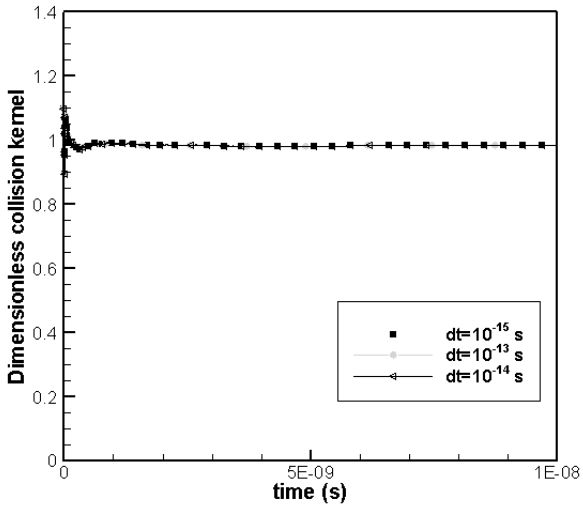


FIGURE 3.7 – Noyau de collision adimensionné en fonction du temps pour l'Hélium - indépendance en pas de temps de l'algorithme de type MD.

TABLEAU 3.2 – Paramètres constants utilisés dans les simulations.

Variable	ϕ	L (m)	$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	N_c^{th}	$\frac{\Delta t}{\tau_p}$	θ (K)	μ_f (Pa.s)	k_B (SI)
Valeur	10^{-4}	10^{-4}	1000	500	$\frac{1}{10}$	$296,15$	$1,83245 \times 10^{-5}$	$1,3806503 \times 10^{-23}$

3.2.2 L'algorithme de collision type MD appliqué à un mouvement brownien pur

Pour compléter la validation de l'implémentation de notre algorithme de type MD, nous avons choisi de le tester dans l'un des cas les moins éprouvés de la littérature : celui du mouvement brownien pur appliqué à des particules colloïdales. Le fluide est donc au repos $\mathbf{U}_s(t) = 0, \forall t$, les particules sont monodispersées et les autres paramètres utilisés sont retranscrits dans le tableau 3.2.

Le schéma numérique utilisé est celui donné dans la Section 1.3.2 avec $\frac{\Delta t}{\tau_p} = \frac{1}{10}$, donc dans le régime de déplacement balistique. La validation recherchée étant le taux de collision théorique du mouvement brownien dans le régime continu (Eq. 2.11). Le noyau estimé adimensionné par cette valeur théorique est donné pour différents diamètres sur les figures 3.8, 3.9 et 3.10.

Comme le montrent les résultats obtenus, cet algorithme est capable de traiter la collision des colloïdes soumis à un mouvement brownien pur. Il s'agit maintenant d'analyser son efficacité en terme de coût de calcul numérique afin de valider ou non le choix d'un tel algorithme.

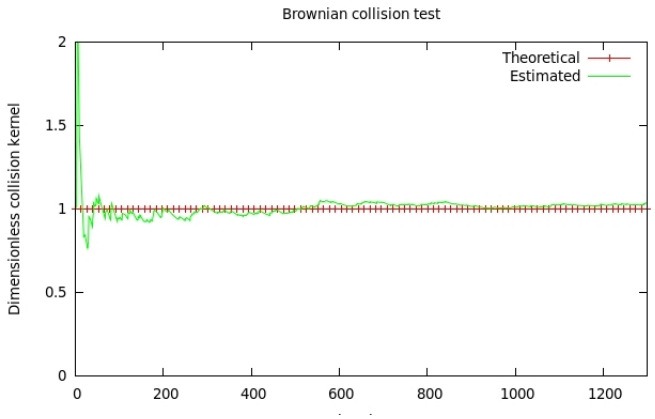


FIGURE 3.8 – Cas test brownien/MD, $d_p = 0,75\mu m; n = 453; \tau_p = 1,70\mu s; Kn = 0,1795$.

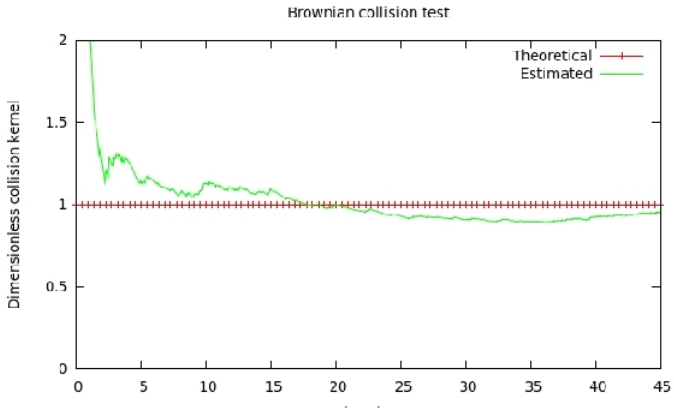


FIGURE 3.9 – Cas test brownien/MD, $d_p = 1\mu m; n = 191; \tau_p = 3,03\mu s; Kn = 0,1346$.

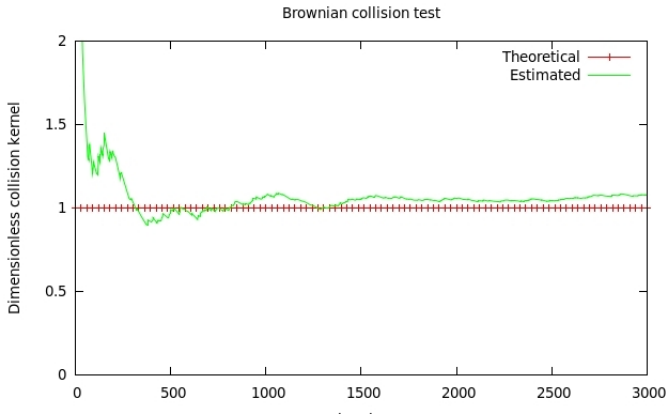


FIGURE 3.10 – Cas test brownien/MD, $d_p = 2\mu m; n = 24; \tau_p = 12,1\mu s; Kn = 6,73 \times 10^{-2}$.

3.2.3 Analyse des coûts numériques

L'analyse porte sur les temps totaux d'exécution des calculs effectués dans le paragraphe précédent (Section 3.2.2). Ces temps, en nombre de jours d'exécution du code de calcul, sont exprimés en fonction du diamètre des particules de la phase dispersée (Fig. 3.11). Les tests ont été effectués sur un processeur Intel ® Xeon à 2,33 GHz.

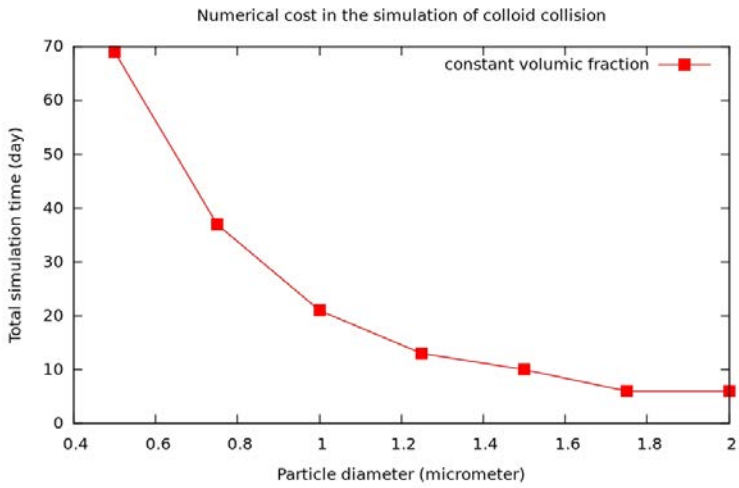


FIGURE 3.11 – Coûts numériques totaux des simulations browniennes avec l'algorithme de type MD - Intel ® Xeon à 2,33 GHz.

Bien qu'ayant des résultats probants vis à vis des taux de collision théoriques, cet algorithme devient très coûteux lorsque le diamètre des particules diminue. En effet, le temps de relaxation des particules est proportionnel au diamètre au carré (Eq. 1.4) et la contrainte imposée par le déplacement balistique $\Delta t \ll \tau_p$, fondement de la mise en œuvre d'un algorithme de ce type, devient très restrictive lorsque τ_p chute. Il semble que le coût numérique croît de manière exponentielle lorsque d_p décroît.

Nous avons choisi d'utiliser un système d'équations (Eqs. 1.16) capable d'outrepasser cette contrainte numérique sur le régime de déplacement des particules. Est-il possible d'utiliser l'un ou l'autre des algorithmes existants présentés dans le cas limite diffusif ($\Delta t \gg \tau_p$), afin de retrouver les taux de collision théoriques en diminuant les coûts numériques ?

3.3 Tests numériques des algorithmes de collision dans le régime diffusif

De prime abord, les algorithmes existants ne fonctionnent que dans le régime de déplacement balistique ($\Delta t \ll \tau_p$) car les raisonnements sont basés sur la mécanique déterministe. Ils nécessitent donc des paramètres constants et un déplacement rectiligne sur chaque pas de temps de simulations. Néanmoins, il est montré que les coûts de calculs engendrés par la détection des collisions sur un champ de colloïdes augmentent largement avec la diminution du diamètre, à la Section 3.1.1 pour l'algorithme de type recouvrement et à la Section 3.2.3 pour

l'algorithme dérivé de la dynamique moléculaire. En effet, dans ces conditions de déplacement ($\Delta t \ll \tau_p$), le pas de temps maximum admissible pour la simulation est directement proportionnel au carré du diamètre.

D'autre part, le schéma numérique choisi pour la modélisation du mouvement des particules a la particularité d'être utilisable aussi bien dans le régime balistique $\Delta t \ll \tau_p$ que dans le régime diffusif $\Delta t \gg \tau_p$, comme expliqué dans la Section 1.3.2. Aucune étude connue ne prouve l'inefficacité des algorithmes de collision présentés dans le cas d'un déplacement purement diffusif pour le champ particulaire. Il s'agit donc d'effectuer quelques simulations afin de vérifier l'importance des hypothèses établies, qui écartent *a priori* l'utilisation de ce type de détection des collisions dans le cas limite diffusif.

Dans le même cadre physique que celui de la validation de l'algorithme MD (Section 3.2.2), celui de particules colloïdales sous influence brownienne pure, les deux types d'algorithmes de détection de collision sont testés dans le cas limite diffusif. Les paramètres de la simulation sont identiques également (Tab. 3.2), à l'exception du pas de temps global de la simulation fixé à des valeurs proportionnelles au temps de relaxation en respectant à chaque fois $\Delta t \gg \tau_p$. Les noyaux de collision adimensionnés par les valeurs théoriques en fonction du temps sont exposés pour l'algorithme de type MD sur le graphique Fig. 3.12 et pour l'algorithme par recouvrement sur la figure 3.13.

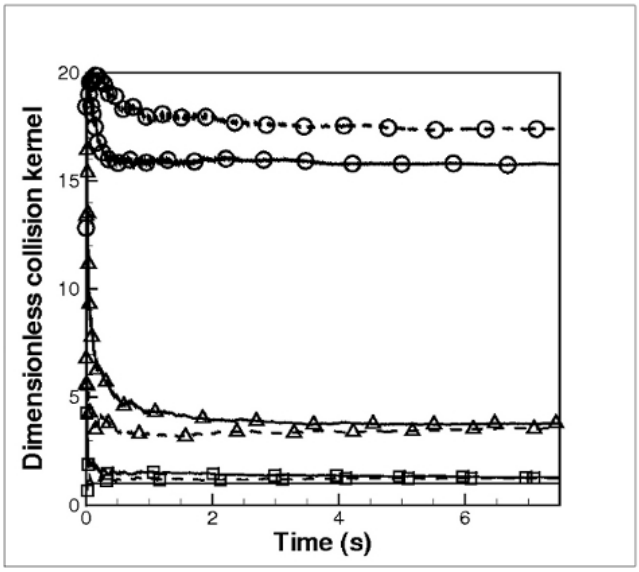


FIGURE 3.12 – Noyau de collision adimensionné pour l'algorithme de type MD utilisé dans le régime de déplacement diffusif sur un pas de temps (*i.e.* $\Delta t \gg \tau_p$), pour plusieurs pas de temps ($\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{10\ (\square), 100\ (\triangle), 1000\ (\bigcirc)\}$) pour $d_p = 0,15\mu m$ (ligne pointillée) et $d_p = 1\mu m$ (ligne pleine).

Alors que l'algorithme de type MD surestime clairement le nombre de collisions dans tous les cas (Fig. 3.12), l'algorithme par recouvrement le sous-estime et donne même, pour certaines valeurs de $\frac{\Delta t}{\tau_p}$, des valeurs qui pourraient paraître acceptables (Fig. 3.13). Ces résultats

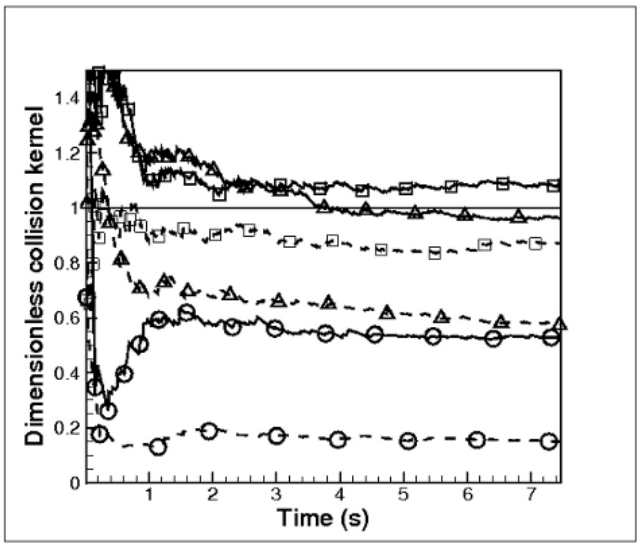


FIGURE 3.13 – Noyau de collision adimensionné pour l'algorithme par recouvrement utilisé dans le régime de déplacement diffusif sur un pas de temps (*i.e.* $\Delta t \gg \tau_p$), pour plusieurs pas de temps ($\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{10\ (\square), 100\ (\triangle), 1000\ (\bigcirc)\}$) pour $d_p = 0,15\mu m$ (ligne pointillée) et $d_p = 1\mu m$ (ligne pleine).

ont un comportement sain qui s'explique aisément. En effet, lorsque le pas de temps global augmente, l'algorithme MD a tendance à aller chercher des partenaires de collision dans un voisinage plus grand (la longueur du cylindre de collision $\|\mathbf{V_{ij}}\|\Delta t$ augmente). Par conséquent, chaque particule i considérée a plus de partenaires potentiels j et donc plus de chance de trouver un voisin remplissant tous les critères de collision. À l'inverse, l'augmentation du pas de temps pour l'algorithme par recouvrement diminue le taux de collision. Ceci s'explique car le déplacement moyen d'une particule sur un pas de temps (de l'ordre de $\overline{\|\mathbf{V_i}\|}\Delta t$) augmente et donc, numériquement, une particule peut complètement "traverser" une autre particule sur un pas de temps sans qu'aucun recouvrement ne soit détecté au début ou à la fin de celui-ci.

Analysons maintenant l'algorithme par recouvrement dans le cas particulier qui donne des résultats acceptables ($\frac{\Delta t}{\tau_p} = 100$). Cette valeur unitaire pour le noyau de collision adimensionné s'explique par le respect du critère de Wunsch (2009) (Eq. 3.2) bien que $\Delta t \gg \tau_p$. En effet, dans le cas du mouvement brownien pur, le libre parcours moyen d'une particule est de l'ordre de $< \Delta \mathbf{X}_p > \sim B_{\text{vit}} \tau_p \sqrt{\Delta t}$ (Eqs. 1.20), ce qui donne $\frac{<\Delta \mathbf{X}_p>}{d_p} \simeq 0,1$ et place le pas de temps sous la limite acceptable pour la détection de toutes les collisions par recouvrement.

Comme nous l'attendions, les algorithmes par recouvrement et dérivé de la dynamique moléculaire se trouvent dans un mode de fonctionnement très dégradé lorsque le régime de déplacement des particules est dans le cas limite diffusif. Ceci s'explique par la nature probabiliste du mouvement, à l'opposé d'un déplacement déterministe supposé lors de l'établissement des critères de détection de ces méthodes. La différence entre les deux modes est exposée sur la figure 3.14. Elle justifie et illustre simplement comment les hypothèses fondatrices des critères de détection imaginés à partir de raisonnements mécaniques déterministes ne sont plus respectées.

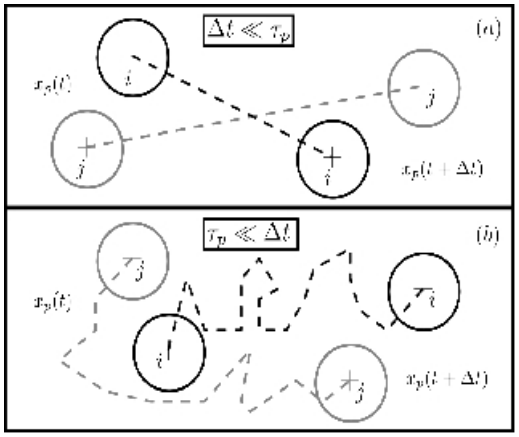


FIGURE 3.14 – Illustration de la différence de régime de déplacement entre le cas balistique pur (a) et le cas diffusif pur (b), pour une paire de particule.

Bien que certains cas puissent trouver des résultats relativement proches des noyaux de collision théoriques, comme lorsque $\frac{\Delta t}{\tau_p} = 100$*, la dépendance vis à vis du choix du pas de temps et les taux de collision très éloignés des valeurs théoriques nous obligent à considérer ces algorithmes comme incapables de détecter toutes les collisions dans un régime de déplacement diffusif pour les particules.*

3.4 Conclusion partielle

Les algorithmes de détection de collision déterministes existants dans la littérature sont exposés et leurs limites sont étudiées. L'algorithme par recouvrement donne directement un critère de validité lié au diamètre des particules (Wunsch, 2009), ce qui montre que son utilisation sur un ensemble de particules colloïdales va faire chuter le pas de temps global de la simulation et de ce fait, va augmenter son coût numérique total. Une étude plus approfondie de l'algorithme de détection dérivé de la dynamique moléculaire s'attache à valider d'abord son implémentation numérique, dans le cadre de la théorie cinétique des gaz et prouve que ce type d'algorithme est capable de traiter le cas de particules sous influence brownienne, moteur principal du mouvement pour les particules les moins inertielles.

Néanmoins, en se préoccupant des coûts numériques, il est montré que l'un ou l'autre des algorithmes impose à toute la simulation un pas de temps global très petit, étant donné son lien direct avec le temps de relaxation des particules (τ_p) et par conséquent, son lien indirect avec le diamètre des colloïdes. Même si le schéma numérique que nous avons choisi est capable de traiter les cas limites balistiques et diffusifs indépendamment du choix du pas de temps de la simulation, le choix d'un algorithme de ce type n'est pas compatible avec ce caractère et impose un déplacement dans le régime balistique pour donner des résultats corrélés à la littérature, en terme de noyaux de collision.

Finalement, un choix s'impose naturellement dans la poursuite de l'étude. Une première voie possible pour la résolution de l'agglomération à partir de particules colloïdales est d'orien-

ter nos recherches dans l'optimisation numérique des méthodes existantes. Par exemple, nous pouvons tenter de diminuer la complexité numérique (*i.e.* le nombre d'opérations à effectuer à chaque pas de temps). Ainsi, l'augmentation du temps numérique total de calcul pourrait être compensée par une telle optimisation. Une seconde option serait d'imaginer une nouvelle méthode capable de traiter les collisions de particules diffusives et balistiques, de manière indépendante du choix du pas de temps par rapport au temps de relaxation. Ce traitement, en adéquation avec le schéma numérique que nous avons choisi, permettrait d'augmenter le pas de temps global de la simulation sans se soucier du régime de déplacement des particules.

Chapitre 4

Conclusion de la première partie

Cette première partie définit le cadre et les limites de notre étude. L'agglomération des particules colloïdales transportées par un écoulement fluide turbulent est modélisée. Les équations de Langevin (Eqs. 1.15) modélisent le mouvement d'une particule isolée en retenant dans un premier temps les influences des forces browniennes et la force de traînée.

Le traitement des forces d'interactions est particulier. En effet, ces forces interviennent à une échelle spatiale trop petite pour être captée par les simulations numériques de mécanique des fluides. C'est pourquoi nous choisissons de prendre en compte les forces issues de la théorie DLVO (Derjaguin et Landau, 1941; Verwey et Overbeek, 1948) afin d'extraire un potentiel écran, capable d'empêcher l'agglomération des particules (Section 1.2.3). Ce potentiel se traduit par un maximum d'énergie, placé à une distance de quelques nanomètres, appelé *barrière d'énergie*. Il peut être comparé à une énergie concurrente issue du mouvement des particules, l'énergie cinétique relative aux deux partenaires de collision. Comme expliqué à la Section 1.2.3, si cette énergie cinétique relative est supérieure à la barrière d'énergie DLVO, alors l'agglomération est effective, sinon les partenaires subissent un simple rebond.

Nous disposons alors d'une modélisation du mouvement d'une particule isolée complétée par un traitement annexe de l'agglomération, de nature physico-chimique.

Parallèlement à cette modélisation, la question de l'intégration numérique des équations du mouvement est posée. Les particules considérées sont sensibles dans une mesure relative à leur inertie aux forces aléatoires browniennes, qui agissent à une très faible échelle spatiale et une courte échelle temporelle. Afin d'éviter qu'une condition de stabilité n'intervienne et ne fasse chuter le pas de temps des simulations, nous utilisons la méthode qui consiste à intégrer formellement les équations du mouvement, pour appliquer ensuite un schéma temporel du premier ordre. Les règles du calcul intégral stochastique doivent être respectées, l'agitation brownienne étant modélisée par un processus de diffusion (Peirano *et al.*, 2006). Il est montré que le schéma numérique choisi est capable de reproduire deux régimes de déplacement antagonistes, le régime balistique et le régime diffusif, qui correspondent respectivement dans la représentation discrète aux contraintes sur le pas de temps $\Delta t \ll \tau_p$ et $\Delta t \gg \tau_p$ (Section 1.3.1).

Le choix de ce schéma numérique permet d'effectuer des simulations sur des champs de particules ayant des diamètres et des inerties très différents sans aucune condition de stabilité. Dans le cas des colloïdes, ce schéma offre la possibilité de simuler le mouvement de particules

dans un régime de déplacement diffusif, balistique, ou un mélange des deux, sans aucune différence ni contrainte.

Le mouvement et le traitement des interactions sur le champ de particules colloïdales ainsi fixés et adaptés aux simulations numériques, nous devons développer une méthode pour détecter ces interactions, dénommée *algorithme de collision*. Le schéma de validation que nous fixons est défini dans le Chapitre 2 et consiste à retrouver les taux de collision théoriques connus dans des cadres physiques bien précis comme le mouvement brownien ou l'agitation turbulente. L'obtention de ces taux de collision semble pouvoir se faire à l'aide d'algorithmes existants dans la littérature.

Les algorithmes par recouvrement (Sundaram et Collins, 1996) sont les plus fréquemment rencontrés et consistent, par différentes variantes, à détecter les chevauchements spatiaux entre les particules. Assez rapidement, nos études (Mohaupt, Minier et Tanière (2011) ou Section 3.2.3) discréditent l'utilisation numérique de ce type d'algorithme dans le cas d'un champ de particules colloïdales, du fait d'un critère de validité existant sur le pas de temps relativement au diamètre des particules (Wunsch, 2009). Bien que capable de fournir les résultats attendus, cette étude montre que le coût numérique d'une simulation se verrait considérablement augmenté pour réussir à capter toutes les collisions.

D'autre part, l'algorithme de détection des collisions issu de critères géométriques basés sur la dynamique moléculaire mérite une attention plus approfondie, le nombre d'études concernant son utilisation dans le cadre d'écoulements dispersés étant notablement faible. De ce fait, son implémentation est validée dans le cadre de la dynamique moléculaire, puis dans le cas de colloïdes agités par la thermalisation d'un fluide au repos. Bien que ce type d'algorithme donne des résultats probants, une étude concernant les coûts numériques renvoie à la même conclusion que pour l'algorithme par recouvrement. Le coût total d'une simulation est largement augmenté par la prise en compte des collisions.

Finalement, chacun des algorithmes présentés se montre capable de détecter les collisions de manière exacte dans le cadre physique qui est le nôtre. Cependant, de larges surcoûts numériques sont à prendre en compte pour ce traitement annexe à la résolution des champs fluide et particule.

Le schéma numérique que nous avons choisi peut simuler le mouvement d'une particule isolée quel que soit le pas de temps global de la simulation. Cependant, un test numérique montre que cette propriété n'est pas compatible avec l'utilisation des algorithmes existants (Section 3.3). Deux axes sont alors possibles pour continuer notre étude. Le premier consiste à adapter les algorithmes actuels au traitement de particules colloïdales, ce qui correspond à une optimisation des méthodes numériques. Le second axe de recherche est celui d'une étude théorique à la base du développement d'une nouvelle méthode de détection, adaptée au traitement de particules de très faible inertie. Cette voie nouvelle apporterait une vision nouvelle dans la modélisation de particules dont la trajectoire est principalement diffusive. Ce travail serait un précurseur dans le domaine de la modélisation de phénomènes physiques par les méthodes stochastiques.

L'orientation choisie dans la poursuite de ce travail est celle développant une nouvelle méthode de détection des collisions, basée sur le caractère stochastique du déplacement des particules colloïdales.

Deuxième partie

L'agglomération de particules diffusives

Chapitre 5

Un nouvel algorithme de collision basé sur les ponts diffusifs

La méthode de détection des collisions entre les particules est basée sur l'idée d'une trajectoire suivant un *pont diffusif*. Cette notion est d'abord illustrée sur un exemple de la littérature puis nous proposons une méthode généralisée à la détection des collisions entre particules dans un espace en trois dimensions, dès lors que la trajectoire des particules est régie par un processus de diffusion. Cette méthode est ensuite validée par des simulations numériques sur un cas physique de diffusion pure, le mouvement brownien, puis pour un cas analytique dans lequel la trajectoire suit un processus de diffusion à coefficient constant. Le traitement des collisions étant simplifié dans cette première validation, une étape de correction est proposée. En adéquation avec la méthode stochastique exposée, elle consiste à traiter les collisions élastiques en évaluant le temps auquel à lieu de la collision de manière stochastique. À partir de ce temps de collision, nous construisons le barycentre des deux particules qui se déplace suivant une trajectoire diffusive. Ensuite, le lieu de la collision est choisi comme l'emplacement du barycentre évalué au temps de collision estimé. Les positions finales des deux particules entrées en collisions sont corrigées en considérant qu'elles se sont trouvées au lieu estimé de la collision à l'instant de contact.

5.1 Préambule : l'utilisation de ponts browniens dans la détection des collisions avec une paroi fixe

Avant d'exposer la méthode complète de détection des collisions entre particules se déplaçant librement dans le domaine considéré, nous allons présenter la notion de *pont brownien* et la détection de collision en une dimension entre une particule en mouvement et une paroi fixe (Dreeben et Pope, 1998). La trajectoire de la particule est une diffusion pure :

$$d\mathbf{X}_p(t) = Bd\mathbf{W}_t, \tag{5.1}$$

avec B un coefficient de diffusion et $d\mathbf{W}_t$ l'accroissement du processus de Wiener. Le choix de B fait correspondre ce modèle de déplacement à différents phénomènes physiques tels que le mouvement brownien (Annexe A) ou la diffusion turbulente. Ce modèle de déplacement est intégré en respectant l'hypothèse que le coefficient de diffusion B est constant dans le temps,

dans chacune des directions de l'espace, notées x, y et z. Le schéma numérique est le suivant :

$$\begin{cases} X_{p,x}(t+\Delta t) = X_{p,x}(t) + B\sqrt{\Delta t}\zeta_x, \\ X_{p,y}(t+\Delta t) = X_{p,y}(t) + B\sqrt{\Delta t}\zeta_y, \\ X_{p,z}(t+\Delta t) = X_{p,z}(t) + B\sqrt{\Delta t}\zeta_z, \end{cases} \tag{5.2}$$

avec $\zeta_{x,y,z} \sim \mathcal{N}(0,1)$.

Soit y la direction normale à la paroi et $X_{p,y}(t) = y_0$ la position de la particule à l'instant t. Nous plaçons la paroi à l'origine, c'est-à-dire en $y = 0$. Comme illustré sur la figure 5.1, sur un pas de temps Δt, la trajectoire diffusive d'une particule peut avoir deux positions finales par rapport à cette paroi : soit $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_a > 0$; soit $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_b < 0$. Dans le cas ou cette particule arrive en $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_b < 0$ (Trajectoire 1), il ne fait aucun doute que la paroi placée en 0 a été franchie, et donc que la particule est entrée en collision avec elle. Par contre, lorsque la position d'arrivée est $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_a > 0$, deux trajectoires sont possibles : celle qui est restée positive tout au long du pas de temps (Trajectoire 2) ou celle qui passe sous la valeur seuil 0 et redevient positive avant la fin du pas de temps (Trajectoire 3). La distinction entre les trois trajectoires présentées sur la figure 5.1 est importante à simuler pour traiter correctement les conditions aux limites à la paroi. En effet, dans le cas d'une particule qui arrive à $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_a > 0$, si le caractère diffusif de la trajectoire n'est pas pris en compte, la condition limite de paroi n'est pas appliquée alors que la probabilité que la particule ait été en contact avec celle-ci est non nulle.

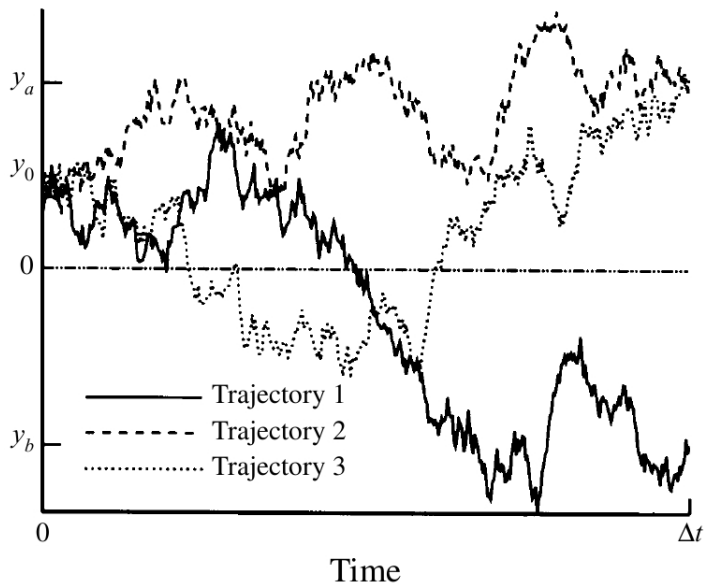


FIGURE 5.1 – Illustration qualitative des différents cas de figures relatifs au déplacement d'une particule diffusive sur un pas de temps par rapport à une paroi placée en 0 - Dreeben et Pope (1998).

Les valeurs de la position aux instants initial et final sont données, ce qui nous oblige à considérer un processus de diffusion conditionné par ces deux instants, notés t et $t+\Delta t$. Ce

type de mouvement diffusif conditionné est appelé *un pont diffusif*. Dans cet exemple, la diffusion étant de nature brownienne (représentée par un processus de Wiener), il convient de l'appeler *un pont brownien*.

Si le traitement d'une collision semble évident lorsque la paroi est franchie, autrement dit lorsque $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_b < 0$ (Trajectoire 1), il faut se demander comment détecter les collisions lorsque $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_a > 0$ et que cette trajectoire a pu passer sous la valeur seuil 0, qui représente la paroi (Trajectoire 3). Comme l'expliquent Dreeben et Pope (1998) il existe alors une probabilité non nulle qu'une particule se déplaçant suivant ce processus de diffusion ait rencontré la paroi, en d'autres termes que ce processus de diffusion ait atteint la valeur seuil durant le temps Δt. Il importe donc d'évaluer la probabilité :

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(X_{p,y}(s)) \leq 0 | X_{p,y}(t) = y_0 \text{ et } X_{p,y}(t+\Delta t) = y_a\right). \tag{5.3}$$

Les travaux de Karatzas et Shreve (1991) permettent de donner la valeur de cette probabilité, notée $\mathcal{P}$ pour simplifier :

$$\mathcal{P} = \exp\left(-\frac{2y_0 y_a}{B^2 \Delta t}\right). \tag{5.4}$$

Cette grandeur représente la probabilité de rencontre entre une particule et la paroi fixe dans la direction normale à cette dernière.

Numériquement dans une simulation de type Monte-Carlo, afin de voir une collision effective, la méthode consiste à comparer la probabilité de rencontre à une variable aléatoire distribuée uniformément sur l'intervalle $[0, 1]$, noté ϵ. Si la probabilité de rencontre est supérieure à ϵ alors la collision sera validée.

Finalement, la collision est effective dans les deux cas suivants :
- si $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_b < 0$, ce qui correspond à la Trajectoire 1 sur la figure 5.1 ;
- si $X_{p,y}(t+\Delta t) = y_a > 0$ et $\mathcal{P} > \epsilon$, ce qui correspond à la Trajectoire 3 sur la figure 5.1.

Cette idée, exposée et utilisée dans le cas d'une collision entre une particule diffusive et une paroi fixe, illustre la base du raisonnement sur les ***ponts diffusifs*** *que nous avons développé pour détecter les collisions entre les particules. Cette notion est appliquée ici en une dimension face à une paroi fixe. Il est ensuite nécessaire de prendre en compte les trois dimensions de l'espace et des particules mobiles.*

5.2 Modélisation du mouvement : le cas limite diffusif

Comme nous l'avons montré dans la première partie de ce document, les algorithmes de détection des collisions existants dépassent les limites acceptables en terme de coûts de calculs dès lors que les diamètres des particules deviennent trop petits (de l'ordre inférieurs au micron). Cela signifie néanmoins qu'au dessus de cette limite leur utilisation dans les codes de simulations est raisonnable (Section 3.3). Ce cas représente le régime de déplacement balistique qui correspond à la contrainte numérique sur le pas de temps $\Delta t \ll \tau_p$ (Section 1.3.1). Il convient alors d'orienter notre étude sur l'autre cas limite, qui correspond au régime de déplacement diffusif, autrement dit lorsque la contrainte numérique sur le pas de temps $\Delta t \gg \tau_p$ est

respectée. Comme expliqué à la Section 1.3.2 à partir des équations Eqs. 1.20, le mouvement des particules est régi dans le cas discret par :

$$\begin{cases} \mathbf{X}_p(t+\Delta t) = \mathbf{X}_p(t) + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)\,\Delta t + B\tau_p\sqrt{\Delta t}\,\zeta_x, \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_s^{DNS}(t) + B\sqrt{\dfrac{\tau_p}{2}}\,\zeta_v. \end{cases} \tag{5.5}$$

Autrement dit, lorsque le fluide est au repos ($\mathbf{U}_s^{DNS}(t) = 0 \quad \forall t$), le régime de déplacement purement diffusif est atteint (Section 1.3.2) :

$$\begin{cases} \mathbf{X}_p(t+\Delta t) = \mathbf{X}_p(t) + B\tau_p\sqrt{\Delta t}\,\zeta_x, \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = B\sqrt{\dfrac{\tau_p}{2}}\,\zeta_v, \end{cases} \tag{5.6}$$

qui se traduit sur la position de la particule par l'équation de mouvement continu :

$$d\mathbf{X}_p(t) = B\tau_p d\mathbf{W}_t. \tag{5.7}$$

Ainsi, dès lors que la contrainte numérique sur le pas de temps de la simulation respecte la condition $\Delta t \gg \tau_p$, la trajectoire d'une particule dans un domaine à trois dimensions correspond à trois mouvements browniens indépendants, dans chacune des directions de l'espace.

5.3 La détection de la collision

5.3.1 Une nouvelle méthode stochastique de détection des collisions

Il s'agit maintenant de traduire en terme de probabilité la condition de contact entre deux particules se déplaçant suivant un processus de diffusion. La figure 5.2 illustre cette condition sur un pas de temps de simulation. En termes stochastiques, l'événement *"collision"* se traduit par *"la distance relative entre les particules i et j est plus petite que la somme des rayons $r_{ij} = r_i + r_j$"*.

Dans un espace à une dimension, le processus de diffusion à considérer est un mouvement brownien pur. Dans un espace à trois dimensions, la distance relative entre les particules i et j se définit comme $\mathbf{X}_{p,ij}(t) = \mathbf{X}_{p,j}(t) - \mathbf{X}_{p,i}(t)$ à chaque instant t. Ainsi, nous pouvons déduire que :

$$\begin{aligned} d\mathbf{X}_{p,ij}(t) &= d(\mathbf{X}_{p,j}(t) - \mathbf{X}_{p,i}(t)), \\ &= d\mathbf{X}_{p,j}(t) - d\mathbf{X}_{p,i}(t), \\ &= B_j\tau_{p,j}d\mathbf{W}_{t,j} - B_i\tau_{p,j}d\mathbf{W}_{t,i}, \\ &= B_{ij}d\mathbf{W'}_t. \end{aligned} \tag{5.8}$$

Les règles de calcul énoncées dans Borodin et Salminen (2002) montrent que la combinaison linéaire de processus de Wiener de variances constantes est un processus de Wiener de variance égale à la somme des variances des différents processus de la combinaison linéaire. C'est-à-dire :

$$B_{ij}^2 = (B_i\tau_{p,i})^2 + (B_j\tau_{p,j})^2. \tag{5.9}$$

Nous avons construit le mouvement brownien relatif à une paire de particules. Il s'agit maintenant de trouver la probabilité de rencontre de ces deux particules, soumises à la diffusion

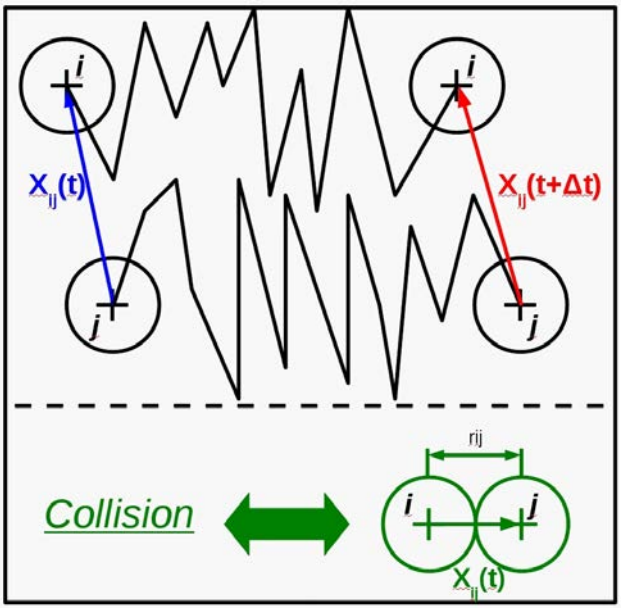


FIGURE 5.2 – Critère de détection de la collision entre deux particules diffusives.

brownienne dans les trois dimensions de l'espace, de manière indépendante. La condition de rencontre est la suivante (Fig. 5.2) :

$$\|\mathbf{X}_{p,ij}(s)\| < r_{ij} \qquad s \in [t; t + \Delta t]. \tag{5.10}$$

De la même manière que dans l'exemple précédent (Section 5.1), il faut trouver la probabilité que la norme du vecteur relatif $\|\mathbf{X}_{p,ij}\|$ atteigne la valeur seuil r_{ij} sur un pas de temps Δt, en connaissant la nature du processus de diffusion suivi par $\|\mathbf{X}_{p,ij}(t)\|$.

Nous avons vu dans l'exemple la formule de cette probabilité pour un pont de nature brownienne avec une valeur seuil nulle (Eq. 5.4). La généralisation de cette formule pour une valeur seuil réelle positive, notée r_{ij}, est (Annexe H) :

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(X_s) \leq r_{ij} | X_t = a, X_{t+\Delta t} = b\right) = \exp\left[-\frac{2(r_{ij} - a)(r_{ij} - b)}{B_{ij}^2 \Delta t}\right]. \tag{5.11}$$

Cependant, dans le calcul de cette probabilité, le processus de diffusion représente un mouvement brownien à une dimension. Or la détection d'une collision entre deux particules en mouvement dans un espace à trois dimensions nécessite de considérer la grandeur scalaire qui représente la norme de la distance relative entre les deux particules. Cette norme est définie par le processus suivant :

$$R_t = \left(\sum_{l=1}^{3} (B_{ij}^l W_t^l)^2\right)^{\frac{1}{2}}. \tag{5.12}$$

La grandeur $l = 1, 2, 3$ représente chacune des directions de l'espace et R_t est la norme euclidienne d'un mouvement brownien en trois dimensions, ici le mouvement brownien relatif à deux

particules. Ce processus R_t s'appelle *le processus de Bessel de dimension* 3 *ou d'ordre* $1/2$.

Alors, la probabilité de rencontre recherchée est la probabilité que ce processus de Bessel de dimension 3 atteigne la valeur seuil r_{ij} sur le pas de temps Δt. Le calcul décrit en Annexe H développé par Dr. Christophe PROFETA (Mathématicien spécialisé dans le calcul stochastique à l'Institut Élie Cartan de Nancy), donne la valeur de cette probabilité en fonction des états initial et final (Eq. 5.13) :

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(R_s) \leq r_{ij} | R_t = a, R_{t+\Delta t} = b\right) = \frac{\exp\left(\dfrac{2r_{ij}(a+b-r_{ij})}{B_{ij}^2 \Delta t}\right) - 1}{\exp\left(\dfrac{2ab}{B_{ij}^2 \Delta t}\right) - 1}, \tag{5.13}$$

pour $a, b > r_{ij}$. Nous re-notons $\mathcal{P}_a^b(r_{ij})$ par simplification, soit :

$$\mathcal{P}_a^b(r_{ij}) = \frac{\exp\left(\dfrac{2r_{ij}(a+b-r_{ij})}{B_{ij}^2 \Delta t}\right) - 1}{\exp\left(\dfrac{2ab}{B_{ij}^2 \Delta t}\right) - 1} \qquad \text{avec } a, b > r_{ij}. \tag{5.14}$$

Cette probabilité se traduit comme la probabilité pour un pont de Bessel partant de la valeur a au temps t et arrivant en b au temps $t + \Delta t$ d'atteindre le minimum r_{ij} pendant le temps Δt. Comme l'illustre la figure 5.2, cette probabilité représente la probabilité de collision de deux particules.

Nous pouvons remarquer que l'expression Eq. 5.14 doit obligatoirement être comprise entre 0 et 1 car c'est une probabilité. Même si la valeur nulle ne peut être atteinte, il apparaît possible de dépasser la valeur limite supérieure 1 si les précautions $R_t = a < r_{ij}$ ou $R_{t+\Delta t} = b < r_{ij}$ ne sont pas respectées. En fait, ces deux cas particuliers correspondent au cas physique où la norme relative initiale ou finale est déjà inférieure à la valeur seuil r_{ij} qui représente le contact. En d'autres termes, ils correspondent aux cas où un recouvrement est effectif aux instants t ou $t + \Delta t$. Nous choisissons donc de ne pas écarter ces cas ($a, b < r_{ij}$) et par souci de précision, nous retenons l'expression suivante afin de nous assurer de détecter exactement toutes les collisions, en incluant celles qui sont des recouvrements au début ou à la fin d'un pas de temps :

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(R_s) \leq r_{ij} | R_t = a, R_{t+\Delta t} = b\right) = \min\left(1\,;\, \mathcal{P}_a^b(r_{ij})\right). \tag{5.15}$$

Il suffit de remarquer qu'un recouvrement correspond à a ou $b < r_{ij}$ qui entraîne $\mathcal{P}_a^b(r_{ij}) = 1$ en utilisant Eq. 5.15.

Nous imaginons une méthode capable de prendre en compte la trajectoire complète d'une particule diffusive sur un pas de temps. En fait, la collision entre deux particules fait intervenir la norme de la trajectoire relative à ces deux particules, qui est un processus de diffusion de Bessel de dimension 3*. À partir des théories stochastiques sur les ponts de diffusions, nous avons, avec l'aide de Christophe PROFETA, donné l'expression de la probabilité de collision dans l'espace à trois dimensions de deux particules soumises à un mouvement brownien pur.*

5.3.2 Validation numérique

Simulations sous l'influence du mouvement brownien pur

Cette méthode doit nous permettre de retrouver les valeurs statistiques données par les noyaux de collision (Section 2). Le cadre physique que nous fixons pour cette validation est un cadre physique de diffusion pure : celui de particules exclusivement soumises à un mouvement brownien dans un fluide au repos. À l'instant initial, les particules sont disposées de manière aléatoire uniforme dans un volume de contrôle de longueur L en respectant une fraction volumique constante $\phi = 10^{-4}$. Les vitesses initiales respectent la distribution à l'équilibre thermique des vitesses de particules browniennes, c'est-à-dire $\mathbf{U}_{p,\text{ini}} \sim \mathcal{N}(0, \frac{k_B\theta}{m_p})$ (Fig. 5.3).

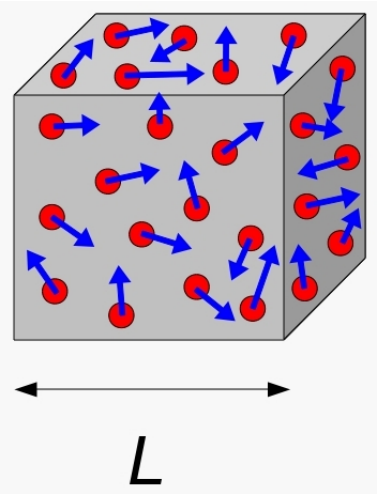


FIGURE 5.3 – Représentation du volume de contrôle et de l'initialisation des positions et vitesses des particules dans les simulations numériques.

À la manière de ce que nous montrons dans la Section 5.2, nous imposons le régime de déplacement diffusif pour les particules, en respectant dans chaque cas la contrainte numérique $\frac{\Delta t}{\tau_p} \gg 1$. Ceci nous assure que les trajectoires des particules suivront un processus de diffusion, en concordance avec le calcul de la probabilité de rencontre. Le cadre physique le plus représentatif de ce type de déplacement, autrement dit qui limite les efforts de modélisations par des représentations très proches du phénomène physique, est celui d'un ensemble de particules soumises à un mouvement brownien pur dans un fluide au repos. Nous rappelons dans ce cas le taux de collision théorique à atteindre (Section 2.2.4, Eq. 2.11) :

$$\Gamma_{\text{co}}^{\text{monodisperse}} = \frac{8k_B\theta}{3\mu}. \tag{5.16}$$

Afin de respecter le régime continu défini par Smoluchowski (1917), $Kn \ll 1$, nous avons testé les diamètres établis dans le Tableau 5.1. Les paramètres physiques communs à toutes les simulations sont résumés dans le Tableau 5.2. Aussi, l'écoulement physique représenté est choisi pour correspondre à certaines hypothèses, notamment avec une fraction volumique de particules très faibles afin d'assurer la détection au maximum d'une unique collision sur un pas de temps. Dans le cadre dans lequel nous nous plaçons, la collision est un évènement rare.

TABLEAU 5.1 – Diamètres et paramètres spécifiques testés dans le cas du mouvement brownien pur.

Diamètre (μm)	τ_p (μs)	Kn
$0,75$	$1,70$	$0,1795$
1	$3,03$	$0,1346$
2	$12,1$	$6,73 \times 10^{-2}$

TABLEAU 5.2 – Paramètres constants utilisés dans les simulations.

Variable	ϕ	L (m)	$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	N_c^{th}	θ (K)	μ_f (Pa s)	k_B (SI)
Valeur	10^{-4}	10^{-4}	1000	2500	$296,15$	$1,83245 \times 10^{-5}$	$1,3806503 \times 10^{-23}$

Les résultats issus de ces simulations, sur la figure 5.4, valident la méthode de détection des collisions de particules soumises à un mouvement diffusif pur. En effet, les taux de collision théoriques sont retrouvés puisque le noyau de collision estimé dans la simulation à partir du nombre de collisions rencontrées (Eq. 2.16) adimensionné par la valeur théorique (Eq. 2.11) évolue autour de l'unité.

Une analyse plus précise des résultats montre une première phase durant laquelle le noyau de collision adimensionné est instable. Cette phase est courte et s'explique par un mécanisme simple. En effet, le noyau de collision issu de la simulation est estimé à partir du nombre de collision rencontré dans le calcul numérique. Dès lors, lorsque ce nombre de collision est trop faible, le taux de collision estimé n'est pas représentatif de la grandeur statistique théorique attendue. En d'autres termes, au tout début du calcul le noyau estimé est comparé à une grandeur statistique mais le nombre de réalisations numériques (*i.e.* collision) trop faible pour que la comparaison avec la théorie ai un sens. Ensuite, dans un deuxième temps et dès lors que le nombre de collision est assez élevé pour effectuer une estimation statistique du noyau, le taux de collision estimé dans la simulation tend vers la valeur théorique puisque le noyau adimensionné évolue autour de un. C'est cette deuxième partie de la courbe de résultat qui est significative et qui valide le bon fonctionnement de l'algorithme de collision.

Une caractéristique importante dans ces simulations est le traitement de la collision. Par nature du processus de diffusion et par construction de la probabilité de rencontre, lorsque le seuil de rencontre est atteint (r_{ij}) une fois, il peut être atteint un nombre infini de fois sur le pas de temps Δt. Ce caractère est résumé dans Borodin et Salminen (2002). Plus simplement, une interprétation simple de ce caractère est possible considérant la propriété de Markov (Annexe G). En effet, la trajectoire d'un processus de diffusion est indépendante des instants précédents, et la valeur moyenne des processus que nous utilisons est nulle. Ceci signifie que lorsqu'une trajectoire se trouve en r_{ij}, elle évoluera dans le futur plus probablement autour de cette position. En outre, si une collision est rencontrée, le processus de diffusion est perturbé et n'est plus respecté. Il faut donc réinitialiser l'un ou l'autre des partenaires de la collision pour éviter d'avoir des collisions successives surestimées entre les deux mêmes particules. Par conséquent, le traitement de la collision qui est fait dans ces simulations est de retirer l'un des partenaires pour le réinitialiser (position aléatoire et vitesse dans la distribution initiale) dans l'écoulement. Ainsi, la fraction volumique de particules reste constante et les trajectoires diffusives pures

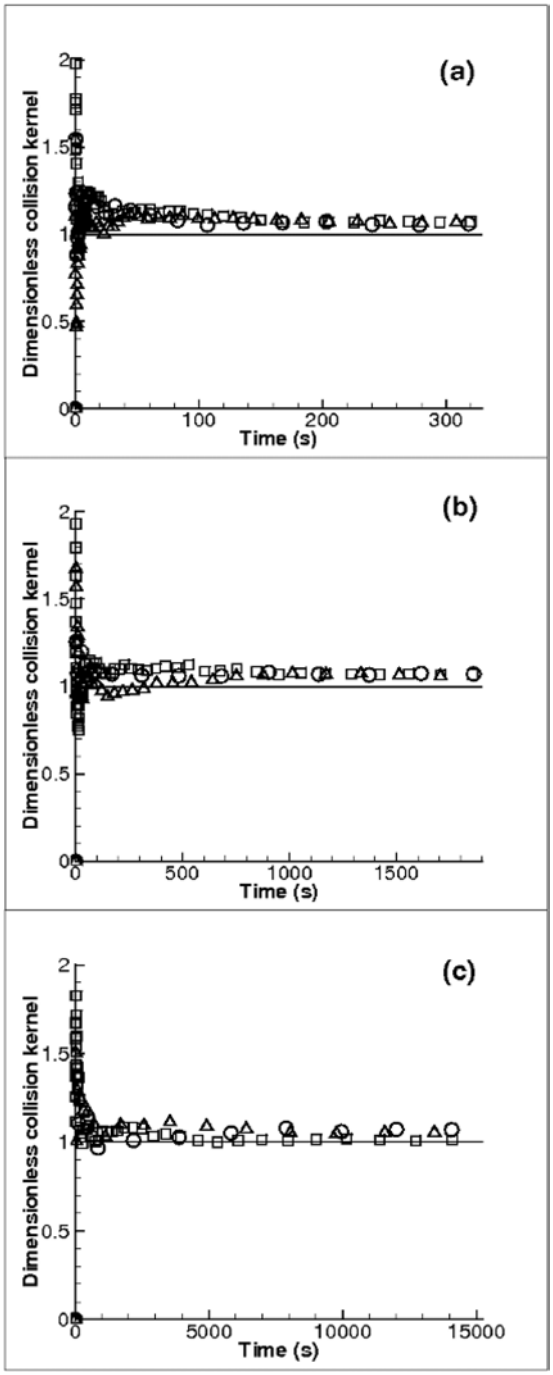


FIGURE 5.4 – Noyau de collision adimensionné pour le nouveau critère de détection des collisions de particules diffusives pour différents pas de temps ($\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{10\ (\square), 100\ (\triangle), 1000\ (\bigcirc)\}$) pour des ensembles de particules monodispersées de diamètres $0.75\mu m$ (a), $1\mu m$ (b) et $2\mu m$.

sont respectées. Bien évidement, ce traitement n'est pas physique, mais nous rappelons que cette étape de validation considère uniquement la détection de la collision par la probabilité de rencontre dans la méthode que nous avons élaborée. Ce point doit être corrigé par la suite afin d'obtenir un algorithme de collision utilisable dans les simulations de type industriel, dans lesquelles la technique de la suppression et le replacement d'un partenaire de la collision est inenvisageable.

Simulations sous l'influence du mouvement diffusif pur à coefficient constant

Pour étendre l'utilisation de notre algorithme à un cas plus général que celui d'une diffusion brownienne, nous étudions la relation fonctionnelle qui existe entre le coefficient de diffusion B_{pos} et le taux de collision K_{th}, par rapport au seuil de rencontre des particules (d_p dans le cas de particules monodispersées). Autrement dit, cette partie est une généralisation de la validation sous influence brownienne pure. En effet, le cadre brownien correspond bien à une diffusion sur la trajectoire des particules, de la forme :

$$d\mathbf{X}_p = B_{\text{pos}} d\mathbf{W}_t, \tag{5.17}$$

mais avec un coefficient de diffusion spécifique à ce phénomène physique $B_{\text{pos}} = \sqrt{\frac{2k_B\theta\tau_p}{m_p}}$. Nous pouvons directement nous rendre compte que le noyau de collision brownien est constant en fonction du diamètre $K_{\text{th}} = \frac{8k_B\theta}{3\mu}$ alors que $B^2_{\text{pos}} \sim \frac{1}{d_p}$. La méthode exposée donne des résultats en accord avec cette dépendance, mais que se passe-t-il dans le cas d'un coefficient de diffusion constant ? ou dépendant linéairement au diamètre des particules ? Nous proposons d'apporter une réponse à ces questions par une analyse fonctionnelle en étudiant le comportement du noyau de collision estimé par les simulations, noté K_e, en fonction du coefficient de diffusion B_{pos}.

Dans une première analyse, nous fixons $B_{\text{pos}} = 10^{-3}$ en faisant varier le diamètre d'un ensemble de particules monodispersées. En prenant la plus petite des valeurs de d_p comme référence, notée $d_{p,\text{ref}}$, nous comparons le noyau de collision obtenu pour cette simulation, noté K_{ref} aux noyaux de collision obtenus pour des diamètres multiples de $d_{p,\text{ref}}$. La figure 5.5 expose ces différentes simulations, effectuées à partir d'un diamètre de référence $d_{p,\text{ref}} = 0,1\mu m$. C'est ainsi que nous mettons en évidence la dépendance linéaire entre B_{pos} et K_e, lorsque B_{pos} est une constante. Sur cette figure 5.5, les points représentent les valeurs issues des simulations alors que la régression linéaire est tracée en trait plein. L'équation de cette régression linéaire se trouve très proche de la droite d'équation $f(x) = x$, comme le prouve le coefficient de régression linéaire R^2 calculé très proche de l'unité.

Ensuite, il nous faut savoir comment se comporte le noyau de collision lorsque $B_{\text{pos}} \propto d_p$. Nous posons alors arbitrairement $B_{\text{pos}} = 10^{-4} d_p$ pour estimer le noyau de collision en fonction du diamètre de référence, toujours choisi comme $d_{p,\text{ref}} = 0,1\mu m$. La figure 5.6 montre alors une dépendance du noyau de collision estimé en d_p^3. Encore une fois, les valeurs issues des simulations se trouvent très proches de la ligne de régression polynomiale $f(x) = x^3$, comme le prouvent l'équation de la régression et le coefficient de régression $R^2 = 1$ exposés sur la figure 5.6.

Ces simulations permettent alors d'écrire que la forme théorique du noyau de collision que nous obtenons avec l'utilisation de notre méthode de détection stochastique des collisions est

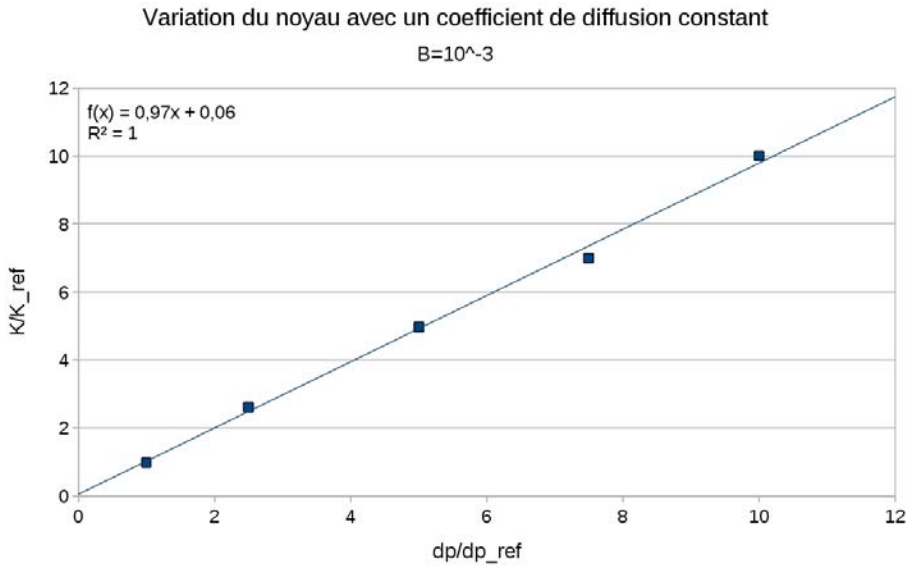


FIGURE 5.5 – Analyse fonctionnelle de la méthode de détection stochastique des collisions - coefficient de diffusion constant.

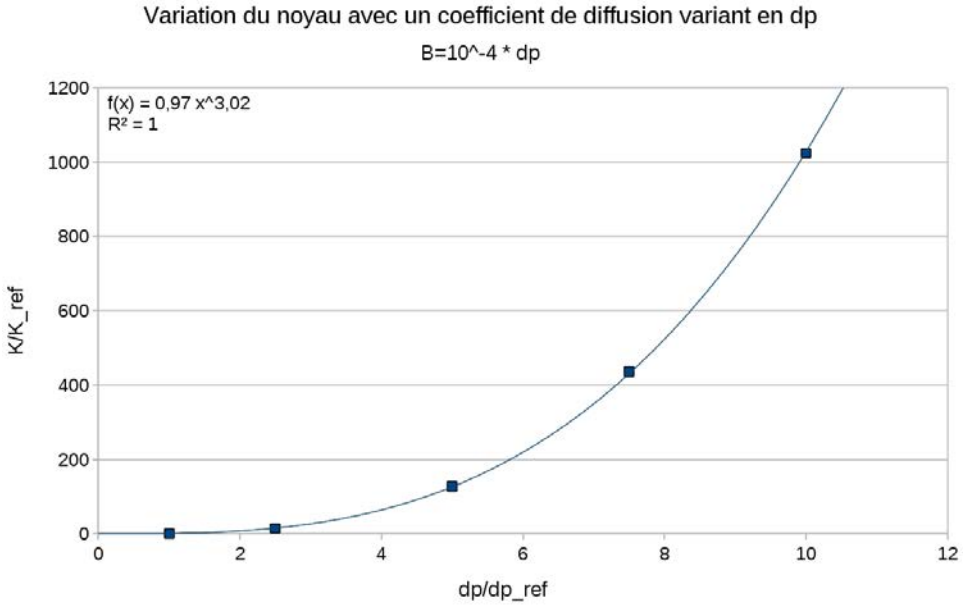


FIGURE 5.6 – Analyse fonctionnelle de la méthode de détection stochastique des collisions - coefficient de diffusion proportionnel au diamètre des particules.

du type :

$$K_e = \text{constante} \times B_{\text{pos}}^2 d_p. \tag{5.18}$$

Cette expression étant vraie également pour le cas brownien, nous pouvons déduire la valeur

de la constante, le noyau de collision et le coefficient de diffusion étant connus de manière théorique. Ceci nous conduit à exprimer le noyau de collision de la sorte :

$$K = 4\pi B_{\text{pos}}^2 d_p. \tag{5.19}$$

Cette grandeur est bien celle donnée par l'analyse théorique physique qui est développée par Friedlander (2000). Nous déduisons donc que dans le cas d'un mouvement diffusif pur sur la position, autrement dit lorsque $d\mathbf{X}_p = B_{\text{pos}} d\mathbf{W}_t$, notre méthode de détection des collisions converge vers les résultats théoriques quelle que soit la valeur du coefficient de diffusion et ses dépendances aux coefficients de la simulation. Nous pouvons noter que la valeur du diamètre dans cette expression correspond à la valeur seuil de rencontre entre deux particules, sur un ensemble de particules monodispersées.

Conclusion partielle

Cette étape de validation intermédiaire montre que la voie que nous avons choisie pour résoudre l'agglomération de particules colloïdales, pour lesquelles le caractère diffusif du mouvement est très important, est encourageante. Nos raisonnements basés sur les calculs stochastiques des probabilités de rencontres sont validés par ces simulations, ce qui ouvre la voie à des recherches ultérieures dans le développement d'une méthode de traitement des collisions stochastiques, plus en accord avec la physique du phénomène. En d'autres termes, nous devons développer une méthode de traitement des collisions élastiques afin de s'affranchir de la méthode numérique artificielle utilisée ici pour la collision entre deux partenaires : la disparition et le replacement de celui-ci dans l'écoulement.

5.4 Le traitement de la collision élastique

L'étape de traitement de la collision est revue pour respecter des contraintes physiques et numériques. En effet, traiter la collision par la disparition et le replacement d'un des deux partenaires de collision ne peut convenir à une étude industrielle dans laquelle les particules sont suivies par ailleurs et ne peuvent pas être réinitialisées par une collision. C'est le cas notamment lors de l'étude de la dispersion d'un ensemble de particules ou de l'agglomération, mais surtout dans le cas où d'un ensemble de particules distribuées de manière non-homogène dans le domaine considéré.

De ce fait, nous proposons un traitement de la collision élastique, cohérent avec notre raisonnement probabiliste de détection des collisions, qui permet de conserver chacun des partenaires d'une collision dans l'écoulement. Toujours dans le même mode de déplacement (trajectoire purement diffusive - Section 5.2), nous proposons une méthode stochastique capable d'évaluer l'instant de la collision. Ensuite, en mêlant les connaissances de la mécanique déterministe et le calcul de trajectoires stochastiques, nous pouvons représenter la trajectoire diffusive du barycentre des deux particules. Ceci nous permet de proposer un lieu pour la collision. Enfin, les positions d'arrivées sont corrigées par les évaluations stochastiques de ces grandeurs qui nous permettent de placer la collision dans l'espace et le temps. Nous validerons cette méthode sur des expériences numériques.

5.4.1 L'instant de la collision

Il s'agit de déterminer l'instant de la collision, noté T_a et compris entre 0 et Δt de sorte que $t + T_a$ soit le temps absolu de la collision dans une simulation. La figure 5.7 illustre cet instant, qui représente la notion stochastique *du premier temps d'atteinte du processus de Bessel* 3 *au niveau* r_{ij}. En d'autres termes, ce temps correspond au premier temps, compris entre 0 et Δt, pour lequel le processus de Bessel 3 passera sous la valeur seuil r_{ij}. Cet événement est une collision, comme expliqué dans la Section 5.3. Ce calcul intervient une fois que la collision est détectée et validée numériquement (à la manière de la Section 5.3) et donc le processus de Bessel 3 que nous considérons est conditionné à franchir ce seuil r_{ij} sur $[0; \Delta t]$.

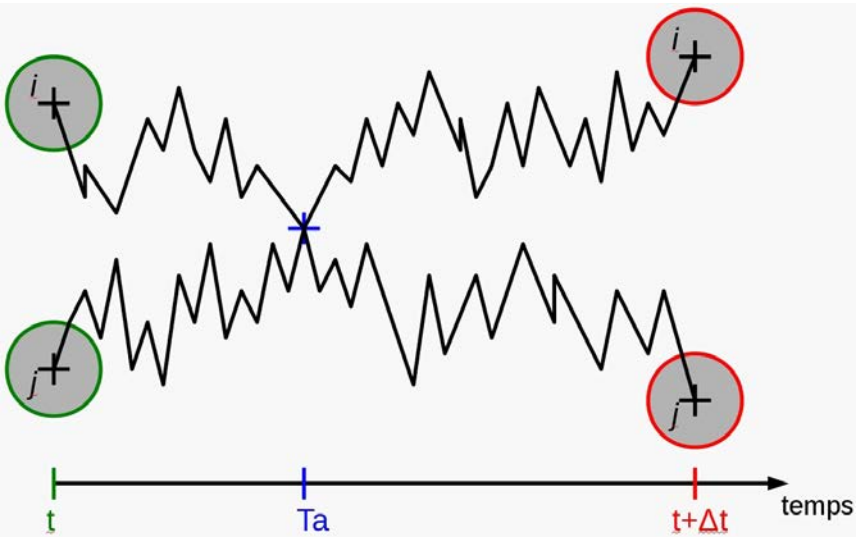


FIGURE 5.7 – Illustration de la variable aléatoire T_a qui représente l'instant de la collision entre deux particules.

Les calculs de Christophe PROFETA décrits en Annexe I permettent d'évaluer la fonction de densité de probabilité de la variable aléatoire T_a. Cette fonction est intégrée pour donner la fonction de répartition de cette variable aléatoire, notée F. En outre, cette fonction de répartition caractérise la variable aléatoire T_a de sorte que :

$$F(u) = \mathbb{P}^{x,\Delta t,y}(T_a < u | T_a < \Delta t). \tag{5.20}$$

La grandeur $\mathbb{P}^{x,\Delta t,y}(T_a < u | T_a < \Delta t)$ est à interpréter comme *la probabilité pour un processus de Bessel* 3 *partant de* x *et arrivant en* y*, durant le temps* Δt*, pour que* T_a *soit plus petit que* u *sachant que* T_a *est plus petit que* Δt. Évaluer u dans cette expression, cela revient à évaluer T_a l'instant de la collision.

Tout calcul fait, l'expression de F est la suivante (Annexe I) :

$$F(u) = \begin{cases} 0 & \text{si } u \leq 0, \\ \frac{1}{2}\left(1 - \frac{I_1 - I_2 - I_3 + I_4}{e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2B_{ij}^2\Delta t}} - e^{-\frac{(x+y)^2}{2B_{ij}^2\Delta t}}}\right) & \text{si } u \in]0, \Delta t[, \\ 1 & \text{si } u \geq \Delta t, \end{cases} \tag{5.21}$$

avec,

$$\begin{cases} I_1 = e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2B_{ij}^2\Delta t}} \text{Erf}\left(\frac{(x-a)}{B_{ij}\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}} - \frac{(y-a)}{B_{ij}\sqrt{2}\Delta t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}}}\right), \\ I_2 = e^{-\frac{(x-y)^2}{2B_{ij}^2\Delta t}} \text{Erfc}\left(\frac{(x-a)}{B_{ij}\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}} + \frac{(y-a)}{B_{ij}\sqrt{2}\Delta t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}}}\right), \\ I_3 = e^{-\frac{(x+y)^2}{2B_{ij}^2\Delta t}} \text{Erf}\left(\frac{(x-a)}{B_{ij}\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}} - \frac{(y+a)}{B_{ij}\sqrt{2}\Delta t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}}}\right), \\ I_4 = e^{-\frac{(x-y-2a)^2}{2B_{ij}^2\Delta t}} \text{Erfc}\left(\frac{(x-a)}{B_{ij}\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}} + \frac{(y+a)}{B_{ij}\sqrt{2}\Delta t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{\Delta t}}}\right), \end{cases} \tag{5.22}$$

en respectant les notations pour les grandeurs initiale $\|\mathbf{X}_{p,ij}(t)\| = x$, finale $\|\mathbf{X}_{p,ij}(t+\Delta t)\| = y$ et le seuil $r_{ij} = a$.

A partir de l'expression analytique de la distribution des premiers temps d'atteinte T_a (la densité de probabilité) pour une collision donnée, nous pouvons vérifier l'estimation de T_a que nous avons implémentée en effectuant un grand nombre de tirages aléatoires pour ϵ et en comparant la distribution des T_a obtenus pour une collision donnée avec la distribution théorique. Les figures 5.8 et 5.9 représentent ces deux grandeurs. Les tests ont été effectués pour différents événements "collision" pour des particules de diamètre 1μm, sur 100000 représentations aléatoires de T_a pour chaque collision. La courbe verte représente la valeur théorique et les points (rouges) représentent les résultats issus des simulations.

Il est maintenant nécessaire d'obtenir une valeur de T_a à partir de cette expression (Eq. 5.21). La technique consiste à résoudre l'équation suivante :

$$F(u) = \epsilon, \tag{5.23}$$

avec ϵ un nombre aléatoire calculé dans une distribution aléatoire uniforme. L'expression de $F(u)$ étant relativement complexe, la résolution exacte n'est pas envisageable. La méthode de résolution par dichotomie est choisie pour évaluer T_a. Il s'agit d'une méthode numérique pour résoudre l'équation $F(u) - \epsilon = 0$ pour $u \in [0; \Delta t]$. Les étapes de résolution sont décrites de manière générale dans l'énumération suivante pour résoudre une équation de type $G(u) = 0$ sur un intervalle réel $[a; b]$:

1. soit $c = \frac{b-a}{2}$ le milieu de l'intervalle de résolution ;
2. si $G(a)G(c) < 0$, cela signifie que l'axe 0 a été franchi, donc $G(u) = 0$ se trouve entre $G(a)$

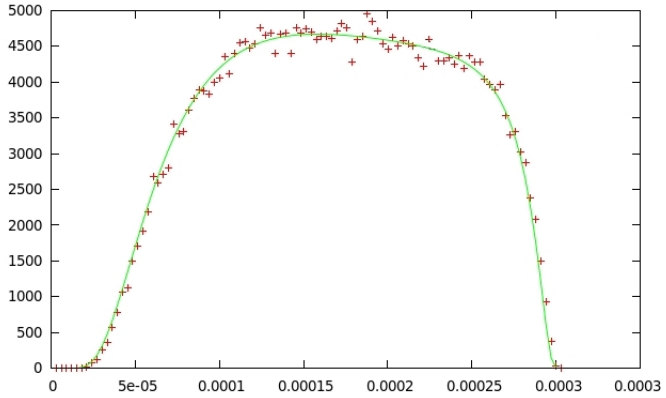


FIGURE 5.8 – Distribution des temps d'atteintes pour une collision donnée (arbitrairement choisie).

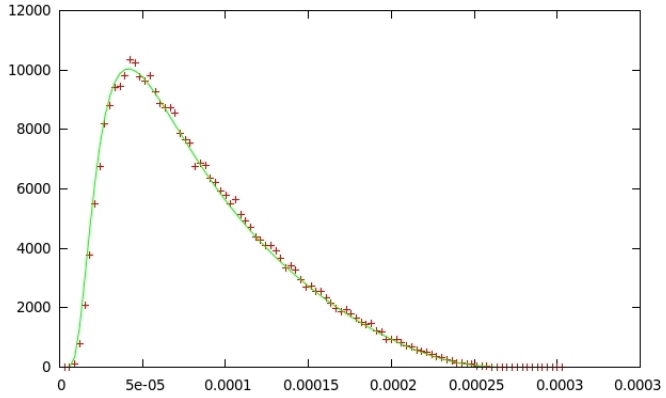


FIGURE 5.9 – Distribution des temps d'atteintes pour une autre collision donnée (arbitrairement choisie).

et $G(c)$, et donc $u \in [a; c]$. Alors $b \leftarrow c$[1] et le calcul est itéré sur le nouvel intervalle $[a; b]$ en retournant à l'étape 1 ;

3. si $G(c)G(b) < 0$, cela signifie que l'axe 0 a été franchi, donc $G(u) = 0$ se trouve entre $G(c)$ et $G(b)$, et donc $u \in [c; b]$. Alors $a \leftarrow c$ et le calcul est itéré sur le nouvel intervalle $[a; b]$ en retournant à l'étape 1 ;
4. le calcul s'arrête pour une précision δ fixée, autrement dit lorsque l'intervalle $[a; b]$ est plus petit que δ, soit $|b - a| < \delta$. Alors $u = \frac{b-a}{2}$ est considéré comme la solution approchée de $G(u) = 0$ à une précision δ.

De cette manière la valeur de T_a est évaluée numériquement avec une précision δ choisie. En pratique dans les simulations effectuées, la valeur de T_a à une précision $\delta = \frac{\Delta t}{100}$ est trouvée en une dizaine d'itérations, ce qui est très satisfaisant en termes de coûts numériques.

Ainsi, nous générons de manière stochastique la valeur de T_a (satisfaisant la loi Eq. 5.21), le premier temps d'atteinte du niveau r_{ij} du processus de Bessel 3, en résolvant l'équation $F(u) - \epsilon = 0$ par la méthode de dichotomie sur l'intervalle $[0; \Delta t]$. Ce temps d'atteinte est une évaluation stochastique du temps auquel a lieu la collision entre les deux partenaires. Il va nous permettre de calculer la position de la collision dans l'espace.

5.4.2 Le lieu de la collision

Le lieu de la collision est également évalué de manière stochastique. En mécanique déterministe nous avons l'habitude de considérer que la trajectoire du barycentre de deux particules reste inchangée par une collision. Nous avons choisi de respecter cette caractéristique dans notre traitement. Cependant, les particules étant dans le régime de déplacement diffusif, le barycentre, dont la trajectoire n'est autre qu'une combinaison linéaire pondérée par les masses des deux particules, suit lui aussi une trajectoire diffusive, comme le représente la figure 5.10.

Les calculs stochastiques décrits en Annexe J montrent comment nous pouvons extraire la loi de comportement de la trajectoire du barycentre de deux particules i et j, noté $\mathbf{b}_{ij}$, à partir des lois qui régissent les trajectoires de ces particules. Entre deux instants t et $t + \Delta t$ et dans chacune des directions de l'espace, notées $l = 1, 2, 3$ et considérées indépendantes, la trajectoire du barycentre est un pont brownien qui suit la loi :

$$b_{ij,l}(s) \sim \mathcal{N}\left(a_l + \frac{(b_l - a_l)s}{\Delta t}, \frac{s(\Delta t - s)}{\Delta t}(B_{ij}^{\text{bary}})^2\right), \tag{5.24}$$

avec le temps $s \in [0; \Delta t]$ et les instants initial $\mathbf{b}_{ij}(0) = \mathbf{a}$ et final $\mathbf{b}_{ij}(\Delta t) = \mathbf{b}$. Le coefficient de diffusion pris en compte respecte les caractéristiques du barycentre et par la règle d'addition des variances pour la combinaison linéaire de deux processus brownien, son expression est (Annexe J) :

$$(B_{ij}^{\text{bary}})^2 = \left(\frac{m_{p,i}B_i\tau_{p,i}}{m_{p,i} + m_{p,j}}\right)^2 + \left(\frac{m_{p,j}B_j\tau_{p,j}}{m_{p,i} + m_{p,j}}\right)^2. \tag{5.25}$$

Nous définissons le lieu exact de la collision dans notre méthode comme étant la position du barycentre à l'instant T_a. Ainsi, connaissant la valeur de T_a calculée comme expliqué dans la Section 5.4.1, nous pouvons évaluer le lieu de la collision en calculant pour chacune des

1. Cette notation algorithmique signifie "b prend la valeur de c"

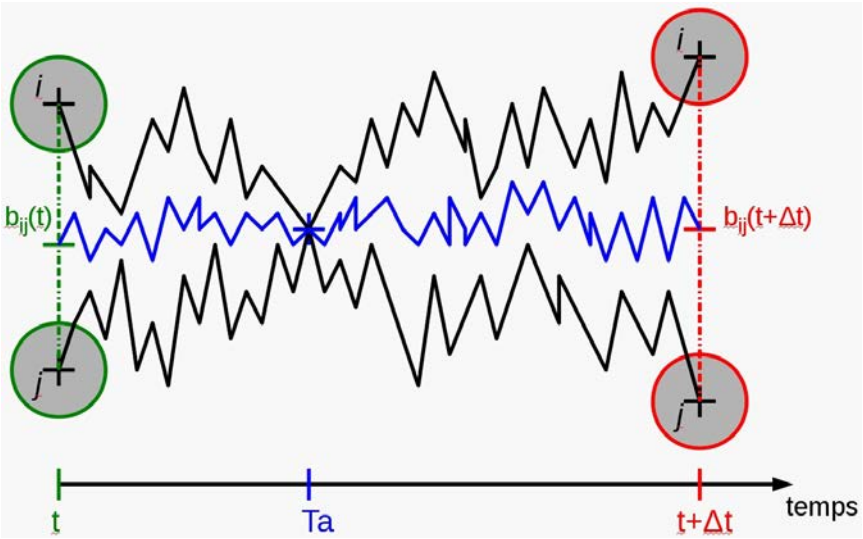


FIGURE 5.10 – Le comportement diffusif du barycentre des deux particules i et j entre t et $t + \Delta t$.

directions de l'espace de manière indépendante la valeur :

$$b_{ij,l}(T_a) \sim \mathcal{N}\left(a_l + \frac{(b_l - a_l)T_a}{\Delta t}, \frac{T_a(\Delta t - T_a)}{\Delta t}(B_{ij}^{\text{bary}})^2\right) \quad l = 1, 2, 3. \tag{5.26}$$

Le point défini de la sorte représente l'endroit où les deux partenaires de collision se sont rencontrés, de manière stochastique, en accord avec le comportement diffusif des particules, la méthode de détection de la collision et l'évaluation de l'instant de collision.

La méthode de détection des collisions est maintenant complétée par une évaluation stochastique du lieu de la collision dans l'espace, grâce au calcul de l'instant de rencontre des deux particules. À partir de ces renseignements complémentaires sur la collision, nous pouvons imaginer un traitement des deux partenaires en accord avec un écoulement physique, autrement dit en évitant de supprimer et replacer aléatoirement l'une des deux particules de la paire collisionnée, comme nous l'avons fait dans l'étape de validation de la méthode de détection (Section 5.3.2).

5.4.3 Traitement de la collision - étape de correction

À partir de la connaissance de toutes les caractéristiques de la collision, l'instant et la position, nous avons imaginé un traitement numérique de type prédiction-correction afin de prendre en compte une collision élastique entre deux partenaires, en évitant la suppression et le replacement aléatoire d'une des deux particules utilisés à la Section 5.3.2.

La technique consiste à placer numériquement l'un des partenaires de collision, la particule i par exemple, dans le plan orthogonal à la ligne des barycentres $b_{ij}(t)$ et $b_{ij}(t + \Delta t)$. Précisément, un vecteur unitaire dans une direction et un sens aléatoires (distribution uniforme) de ce plan est généré et la particule i est placée suivant ce vecteur unitaire, écartée de la position de

la collision ($b_{ij}(T_a)$) d'une distance égale à son rayon, comme l'illustre la figure 5.11. Ensuite, à partir de cette position, la trajectoire de la particule i est ré-évaluée afin de corriger sa position d'arrivée. Ceci est représenté en traits pleins de couleur rouge sur la figure 5.11 alors que les anciennes positions sont représentées en traits pointillés. Ces anciennes positions ont permis la détection d'une collision par la probabilité de collision, ainsi que l'évaluation du barycentre, considéré comme inchangé. Ensuite, afin de respecter au mieux la modification de la trajectoire diffusive par l'événement "collision", nous avons choisi de réinitialiser le processus de diffusion de l'une des particule (i) à partir de l'instant de la collision (T_a) en conservant le barycentre à l'instant final pour replacer la seconde particule (j). Cette nouvelle méthode stochastique de traitement d'une collision élastique est illustrée sur la figure 5.11.

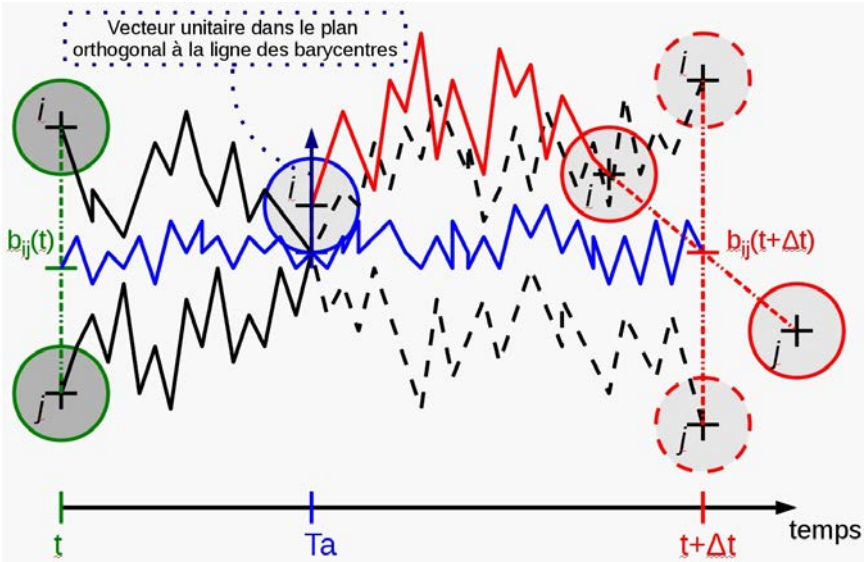


FIGURE 5.11 – Un nouveau traitement stochastique de la collision élastique - étape de correction des positions d'arrivées.

Cette méthode permet de résoudre l'incohérence physique induite par le premier traitement de la collision (suppression/replacement) que nous avons utilisé dans un premier temps pour valider le processus de détection. Il s'agit maintenant de prouver son efficacité dans un contexte de simulations numériques.

5.4.4 Validation numérique

Cadre physique théorique

Ces simulations s'effectuent toujours dans le régime de déplacement diffusif pour les particules (Section 5.2). La détection des collisions par la nouvelle méthode stochastique est utilisée (Section 5.3) et chaque collision rencontrée est traitée comme une collision élastique, à la manière nouvellement décrite (Section 5.4). Les paramètres constants des simulations sont retranscris dans le Tableau 5.3. L'écoulement correspond à un ensemble de particules monodispersées soumises uniquement à une diffusion dans un fluide au repos.

TABLEAU 5.3 – Paramètres constants utilisés dans les simulations.

Variable	d_p (μm)	B (m $\sqrt{\text{s}}$)	L (m)	ϕ	$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	N_c^{th}	θ (K)	μ_f (Pa s)
Valeur	1	10^{-2}	5×10^{-3}	10^{-10}	1000	5500	$296,15$	$1,83245 \times 10^{-5}$

Dans ce cadre physique, Friedlander (2000) indique le taux de collision théorique à retrouver (Eq. 5.27) et la Section 5.3.2 montre que notre méthode de détection est valable dans le cas d'une trajectoire purement diffusive à coefficient de diffusion constant. Pour rappel, le taux de collision théorique d'un ensemble de particules de diamètres identiques d_p dont la trajectoire est gouvernée par un processus de diffusion de coefficient B est donné par :

$$K_{\text{th}} = 4\pi d_p B^2. \tag{5.27}$$

Simulations numériques

Les simulations numériques doivent se dérouler dans un cadre précis, afin de respecter les hypothèses d'établissement de la méthode. Pour être sûr de se trouver dans le cas illustré sur la figure 5.11, nous devons nous assurer que le déplacement moyen des particules sur un pas de temps, noté σ_X se trouve bien supérieur au diamètre des particules. L'expression de ce déplacement moyen est donné par (Gardiner, 1985) :

$$\sigma_X =< (\Delta X)^2 >^{\frac{1}{2}} = B\sqrt{\Delta t}, \tag{5.28}$$

ce qui nous permet de vérifier que dans chacune des simulations, le quotient $\frac{\sigma_X}{d_p}$ se trouve toujours bien supérieur à un. Les tests sont effectués pour différents pas de temps exposés dans le Tableau 5.4.

TABLEAU 5.4 – Paramètres spécifiques testés dans les simulations.

$\frac{\Delta t}{\tau_p}$	$\frac{\sigma_X}{d_p}$
$0,1$	$5,5$
1	$17,4$
5	$38,9$

Les résultats des simulations sont présentés sur la figure 5.12 en fonction du temps, sous la forme du noyau de collision estimé par la simulation (à partir du nombre de collisions rencontrées - Eq. 2.16) adimensionné par le noyau de collision théorique (Eq. 5.27). Sur cette figure, l'unité est tracée en trait plein, l'ancien traitement par suppression et replacement est représenté par □ et le nouveau traitement stochastique par ◯.

Les très bons résultats obtenus pour ces simulations valident numériquement la convergence des taux de collision estimés par la nouvelle méthode stochastique proposée vers les taux de collision théoriques. Ces résultats encourageants donnent du crédit à la démarche stochastique et permettent d'imaginer la continuation des validations et des développements dans cette voie de recherche.

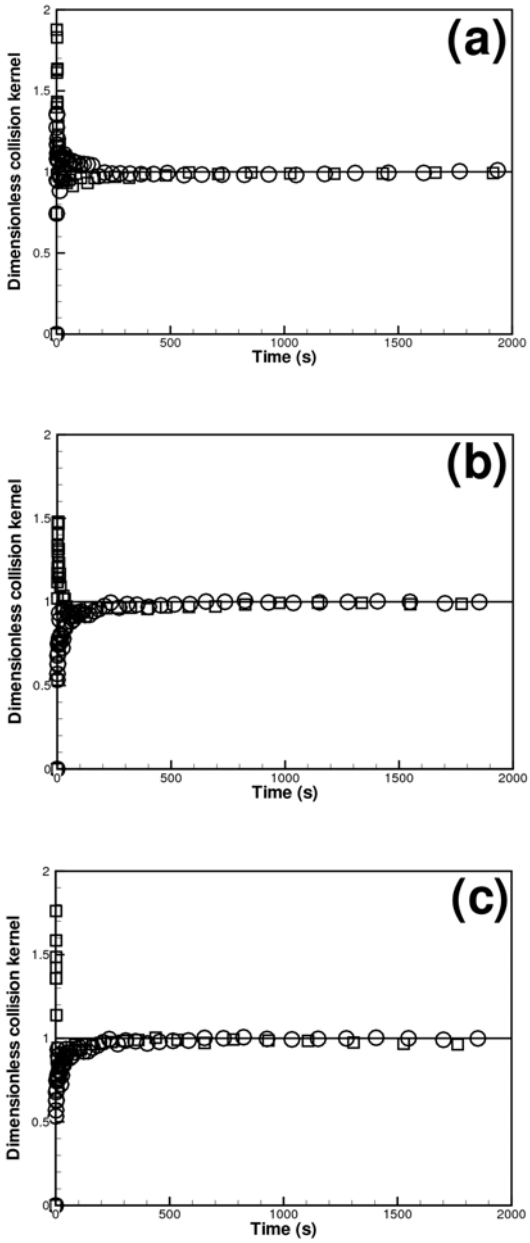


FIGURE 5.12 – Noyau de collision adimensionné pour le nouveau traitement des collisions élastiques de particules diffusives pour différents pas de temps ($\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{0,1$ (a), 1 (b), 5 (c)$\}$) pour des ensembles de particules monodispersées de diamètres $1\mu m$.

5.5 Conclusion partielle - L'algorithme complet

Dans un premier temps, nous avons décrit puis validé une nouvelle méthode de détection des collisions pour des particules dont les trajectoires sont purement diffusives. Cette méthode

stochastique est basée sur l'idée des ponts diffusifs adaptés à la norme relative d'une paire de particules, qui suit un processus de Bessel de dimension 3 dans l'espace. Lorsque le minimum de cette norme relative sur le pont de Bessel durant un pas de temps devient plus petit que la distance minimum séparant deux particules (r_{ij}), une collision est rencontrée. C'est en terme de probabilité que cet événement est utilisé et simulé. La validation numérique, effectuée sur un cas test de mouvement brownien pur, est satisfaisante puisque les taux de collision théoriques attendus sont retrouvés. Cependant, chaque collision n'est pas traitée explicitement pour respecter la nature diffusive du déplacement. Ainsi, la première technique utilisée pour rester dans le cadre théorique imposé est de supprimer l'un des partenaires de la collision pour le ré-initialiser dans l'écoulement, conservant ainsi la concentration en particules inchangée. Ce point n'étant pas satisfaisant pour des simulations dans un cadre physique, la nécessité d'imaginer une méthode de traitement efficace s'est présentée.

Dans la lignée des développements stochastiques effectués pour détecter la collision, l'instant et le lieu de la collision sont estimés, toujours à partir des caractéristiques du processus de Bessel 3. L'instant de la collision correspond au premier temps de passage de ce processus sous le seuil de collision r_{ij} ; alors que le lieu de la collision est choisi comme étant la position du barycentre des deux particules à cet instant. Il faut bien noter que la trajectoire du barycentre étant une combinaison linéaire des trajectoires diffusives des deux particules, elle suit également un processus de diffusion brownien. Sa position peut donc être estimée par la théorie des ponts browniens.

Cette méthode est novatrice dans le traitement de la collision dans le cadre d'un déplacement diffusif des particules. Elle considère la trajectoire complète, en termes statistiques, des particules soumises à un mouvement diffusif pur. Étant donnée la nouveauté de l'algorithme proposé, les limites d'utilisations ainsi que l'adaptation de la technique à des particules plus ou moins diffusives, soumises à un mouvement brownien amorti par exemple (comme dans les équations de Langevin) restent à développer.

Dans le traitement des collisions, le cas limite de déplacement balistique est bien traité par les algorithmes existants, (Wunsch, 2009) par exemple. La méthode exposée ici répond à la question de ce traitement dans le cas limite diffusif. Les développements futurs pourront s'intéresser à la jonction entre ces deux méthodes, qui à première vue semble envisageable. En effet, la probabilité de rencontre telle que nous l'avons définie à l'équation 5.15 assure que les recouvrements utilisés dans la méthode de Wunsch (2009) sont également détectés.

Cet algorithme, dont une représentation schématique complète est présentée sur la figure 5.13, a été développé et validé dans le cas de particules ayant des trajectoires purement diffusives. Son comportement doit maintenant être analysé par rapport à des colloïdes dans un écoulement turbulent.

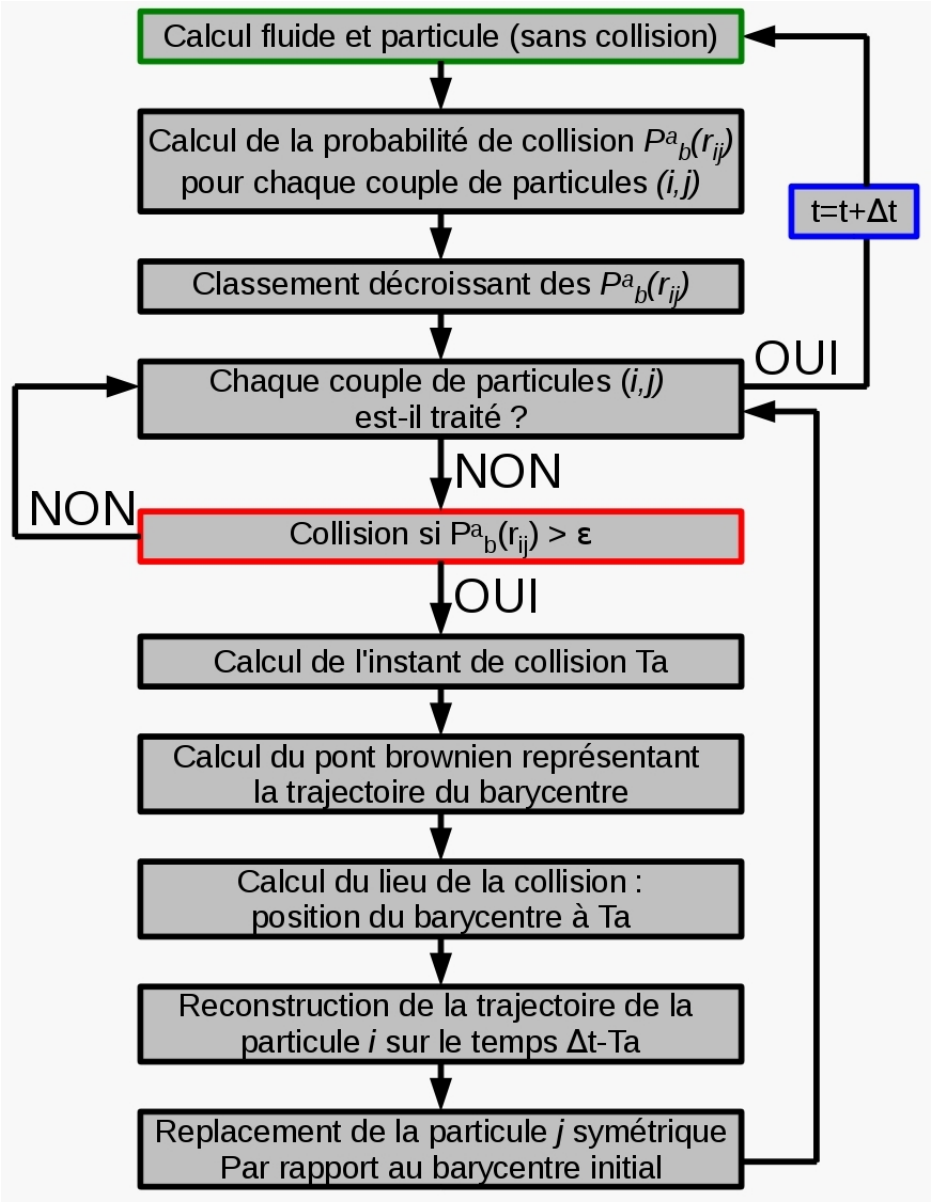


FIGURE 5.13 – Représentation schématique complète du nouvel algorithme stochastique.

Chapitre 6

Application du nouvel algorithme à l'agglomération due à la turbulence

Un colloïde est par définition une particule pour laquelle la vitesse due à l'agitation moléculaire est du même ordre de grandeur que la vitesse limite de chute. Autrement dit, la taille et l'inertie de ces particules les rendent sensibles à différents phénomènes physiques, comme l'agitation thermique et la turbulence. La gravité peut aussi intervenir mais elle est écartée dans cette première approche.

La nouvelle méthode de détection et de traitement stochastique des collisions a été présentée pour le cas de la diffusion brownienne et également lorsque le coefficient de diffusion est arbitrairement fixé à une valeur constante (Section 5.3.2). Dans chacun de ces cas, les résultats sont concluants et prouvent la capacité de la nouvelle méthode à traiter les collisions pour des colloïdes suivant des trajectoires diffusives. Il s'agit maintenant de chercher à prendre en compte l'agglomération due à l'influence de la turbulence dans cette nouvelle méthode.

Nous allons dans un premier temps rappeler les grandeurs qui caractérisent la turbulence d'un écoulement fluide et le comportement statistique de l'agglomération dans ce cadre. Une analyse comparative entre les deux phénomènes d'agglomération (brownien et turbulent) sera présentée. Nous montrerons que la notion de diffusivité relative d'une paire de particules est primordiale dans la nouvelle méthode que nous proposons pour le traitement des collisions. Cette notion sera exposée en utilisant des références de la littérature. Une mise en forme d'un coefficient de diffusion prenant en compte la turbulence du fluide et le mouvement brownien sera proposée afin de correspondre au cadre physique générale de colloïdes soumis à un écoulement fluide turbulent.

6.1 Rappels sur la théorie de la turbulence et l'agglomération

La représentation de la turbulence selon Kolmogorov (Batchelor, 1953; Pope, 2000) considère une cascade d'énergie des grandes échelles, dépendantes de l'écoulement non homogènes et non isotropes, vers les plus petites échelles, où la viscosité devient dominante et dissipe l'énergie cinétique en chaleur. Cette théorie, qui reste la référence en turbulence, in-

troduit notamment la notion d'une turbulence localement homogène isotrope et la cascade est alors entièrement caractérisée par la valeur du taux de dissipation de l'énergie turbulente ϵ, de la viscosité et d'une estimation de la fluctuation de la vitesse d'agitation autour de la vitesse moyenne, notée u', de sorte que la vitesse d'agitation soit égale à $u_{\text{agit}} = \bar{u} + u'$ avec $\frac{u'}{\bar{u}} \ll 1$. Dans cette description, il y a équilibre entre les taux de production, de transfert et de dissipation de l'énergie turbulente. De cette manière, les tourbillons les plus grands ont une échelle de taille de l'ordre de :

$$L_k = \frac{(u')^3}{\epsilon} \tag{6.1}$$

alors que les plus petits seront de l'ordre de grandeur de l'échelle de taille de Kolmogorov, notée η_k avec ν_f la viscosité cinématique du fluide :

$$\eta_k = \left(\frac{\nu_f^3}{\epsilon}\right)^{\frac{1}{4}}. \tag{6.2}$$

Pour fixer des ordres de grandeur, dans l'eau ($\nu_f = 10^{-6} m^2 s^{-1}$) et pour les taux de dissipation de l'énergie turbulente ϵ de l'ordre de $\epsilon_{\text{min}} = 10^{-5} m^2 s^{-3}$ et $\epsilon_{\text{max}} = 10^{-2} m^2 s^{-3}$ rencontrés habituellement dans les écoulements turbulents en conduite, l'estimation de la taille des plus petits tourbillons turbulents η_k est de l'ordre de :

$$\begin{cases} \epsilon_{\text{min}} = 10^{-5} m^2 s^{-3} \Rightarrow \eta_k = 560 \mu m, \\ \epsilon_{\text{max}} = 10^{-2} m^2 s^{-3} \Rightarrow \eta_k = 100 \mu m. \end{cases} \tag{6.3}$$

De la même manière, l'estimation des temps caractéristiques des plus petits tourbillons τ_k est de l'ordre de :

$$\begin{cases} \epsilon_{\text{min}} = 10^{-5} m^2 s^{-3} \Rightarrow \tau_k = 0,316 s, \\ \epsilon_{\text{max}} = 10^{-2} m^2 s^{-3} \Rightarrow \tau_k = 0,01 s. \end{cases} \tag{6.4}$$

Ces ordres de grandeur sont d'une importance cruciale dans les simulations numériques puisque cette plus petite échelle de taille définit la taille maximum admissible d'une maille de calcul pour capter l'ensemble des tourbillons turbulents. Il est simple de montrer que le rapport des grandes échelles sur les petites, qui couvre alors toute la gamme de taille des tourbillons turbulents, est égal au nombre sans dimension de Reynolds ($Re = \frac{uL_k}{\nu_f}$) élevé à la puissance $\frac{3}{4}$. Ainsi, le nombre de mailles nécessaire à la simulation d'une turbulence homogène isotrope d'un volume en trois dimensions est directement proportionnel à $Re^{\frac{9}{4}}$, ce qui peut mener à des nombres de mailles très élevés dès que l'agitation turbulente devient assez grande. De la même façon, le pas de temps de la simulation doit être typiquement plus petit ou de l'ordre de grandeur de τ_k afin de simuler explicitement les fluctuations temporelles.

D'autre part, nous voyons directement à partir des ordres de grandeurs du système 6.3 que la taille des plus petites échelles de tourbillons de la turbulence η_k reste environ 100 fois supérieure à la taille d'un colloïde, de l'ordre du micron. De la même manière, le temps caractéristique des particules colloïdales est bien plus petit que le temps de Kolmogorov et donc les colloïdes s'ajustent aux caractéristiques du fluide. Sous cette plus petite échelle de taille de la turbulence η_k, l'écoulement est laminaire cisaillé, avec un gradient de vitesse variable. Ce gradient de vitesse est noté Γ_k et il est estimé de l'ordre de $\Gamma_k \sim \sqrt{\frac{\epsilon}{\nu_f}}$ (Batchelor, 1953; Pope, 2000). Une paire de particules colloïdales est représentée dans ce cadre physique sur la figure 6.1.

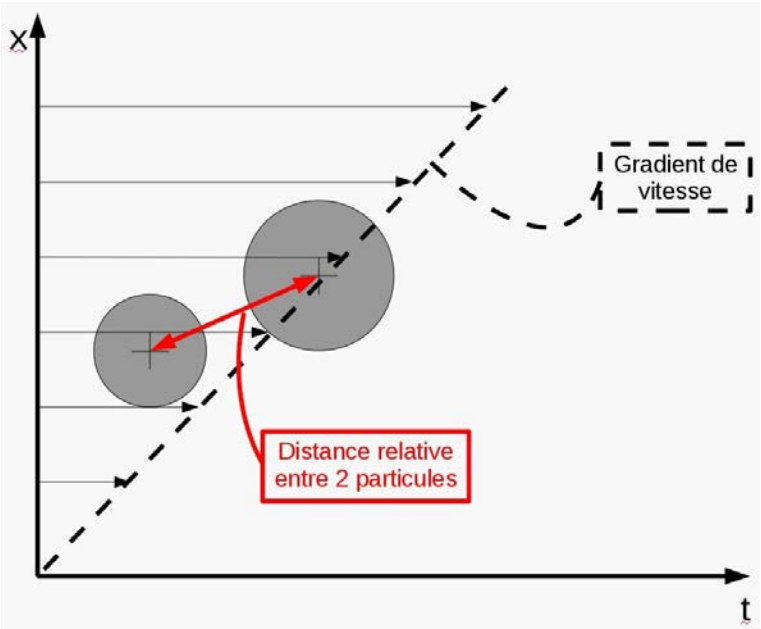


FIGURE 6.1 – Illustration d'une paire de particules colloïdales dans un écoulement turbulent, sous l'échelle de taille de Kolmogorov.

Les travaux de Saffman et Turner (1956) s'inscrivent exactement dans le cadre des hypothèses émises ici : celui de particules qui s'agglomèrent sous la limite de taille donnée par l'échelle de Kolmogorov η_k. C'est à partir d'une estimation de l'amplitude moyenne du gradient de vitesse dans le cas d'une turbulence homogène isotrope, évaluée à $|\bar{\Gamma}_k| = \sqrt{\frac{2\epsilon}{15\nu_f}}$, que Saffman et Turner (1956) ont pu donner la valeur du taux d'agglomération des particules soumises à une énergie turbulente. L'hypothèse d'une agglomération sub-Kolmogorov doit être respectée, comme c'est le cas pour les colloïdes. Pour un ensemble de particules monodispersées, le noyau d'agglomération vaut (rappel de la Section 2.2.3, Eq. 2.5) :

$$K_{\text{th}}^{\text{turbulent}} = \sqrt{\frac{8\pi\epsilon}{15\nu_f}} d_p^3. \tag{6.5}$$

Nous pouvons maintenant nous demander si ce noyau est effectivement influent sur le phénomène d'agglomération global qui agit sur les colloïdes. Pour ce faire, une étude comparative des noyaux brownien et turbulent est nécessaire, ces deux phénomènes étant les moteurs principaux du mouvement des particules microniques.

6.2 Analyse d'influence qualitative

Nous allons comparer les valeurs relatives de noyaux théoriques d'agglomération pour les phénomènes physiques d'agitation brownienne et turbulente dont les valeurs théoriques sont exposées dans le Chapitre 2. Le noyau d'agglomération brownien relatif à des particules colloïdales est constant en fonction du diamètre lorsque les particules sont monodispersées. Pour

rappel, il vaut (rappel de la Section 2.2.4, Eq. 2.11) :

$$K_{\text{th}}^{\text{brownien}} = \frac{8k_B\theta}{3\mu_f}. \tag{6.6}$$

D'autre part, le taux d'agglomération théorique d'un ensemble de colloïdes de même diamètre d_p soumis à l'agitation turbulente est donné par (rappel de la Section 2.2.3, Eq. 2.5) :

$$K_{\text{th}}^{\text{turbulent}} = \sqrt{\frac{8\pi\epsilon}{15\nu_f}}d_p^3. \tag{6.7}$$

Les figures 6.2 et 6.3 exposent les valeurs des noyaux brownien et turbulent pour deux valeurs typiques du taux de dissipation ϵ rencontrées dans les écoulements de conduites, dans l'eau ($\nu_f = 10^{-6}m^2s^{-1}$) et en fonction du diamètre des particules. Elles montrent clairement le fait que les particules qui se trouvent dans la gamme colloïdale, autrement dit de diamètres compris entre $d_p = 0,1 - 2\mu m$, les taux d'agglomération théoriques sont d'une même importance relative, soit $K_{\text{th}}^{\text{turbulent}} \simeq K_{\text{th}}^{\text{brownien}}$. Cette étude comparative prouve que l'un et l'autre de ces deux phénomènes physiques contribuent à l'agglomération des colloïdes.

La nécessité de prendre en compte les phénomènes de transport physique dus à l'agitation brownienne et à la turbulence est démontrée. La question est maintenant de modéliser ce mélange d'influence par une technique en accord avec la détection des collisions stochastiques que nous avons mise en œuvre à la Section 5.3. C'est ainsi que nous devons introduire la notion de diffusivité d'une paire de particules, nécessaire à l'application de la méthode de traitement stochastique des collisions.

6.3 Notion de diffusivité relative

6.3.1 Représentation théorique et définition

Pour détecter et traiter une collision entre deux particules, la nouvelle méthode stochastique que nous avons élaborée nécessite de s'intéresser à la distance relative entre les colloïdes, donc à leur trajectoire relative. Cette trajectoire se construit à partir des trajectoires de chacune des particules, supposée purement diffusive. Pour chaque particule, la trajectoire prend la forme :

$$d\mathbf{X}_p = B_{\text{pos}}d\mathbf{W}_t. \tag{6.8}$$

La trajectoire relative à deux particules, définie par $\mathbf{X}_{p,j} - \mathbf{X}_{p,i}$, est alors également un processus de diffusion, qui suit :

$$d\mathbf{X}_{p,ij} = B_{\text{pos},ij}d\mathbf{W}_t, \tag{6.9}$$

en respectant la règle d'addition des variances pour donner le coefficient de diffusion :

$$B_{\text{pos},ij}^2 = B_{\text{pos},i}^2 + B_{\text{pos},j}^2. \tag{6.10}$$

à la manière de ce que nous avons déjà fait dans la Section 5.3, ce qui défini le coefficient de diffusion de la trajectoire relative d'une paire de particules suivant chacune une trajectoire diffusive.

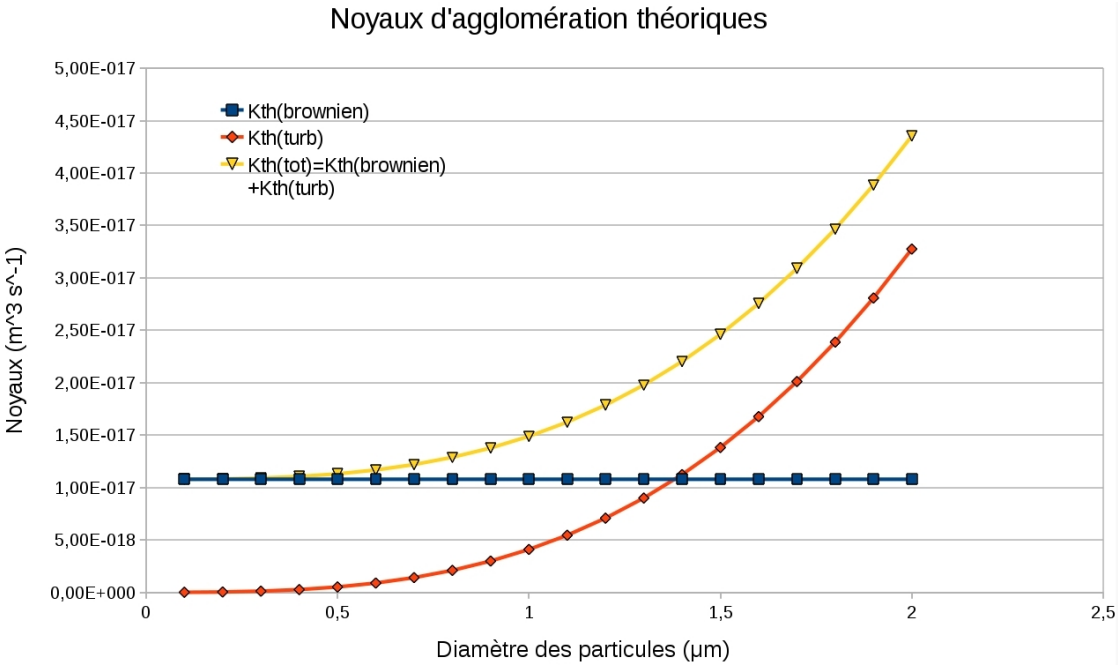


FIGURE 6.2 – Comparaison des noyaux d'agglomération brownien et turbulent pour un taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente $\epsilon_{\text{min}} = 10^{-5} m^2 s^{-3}$.

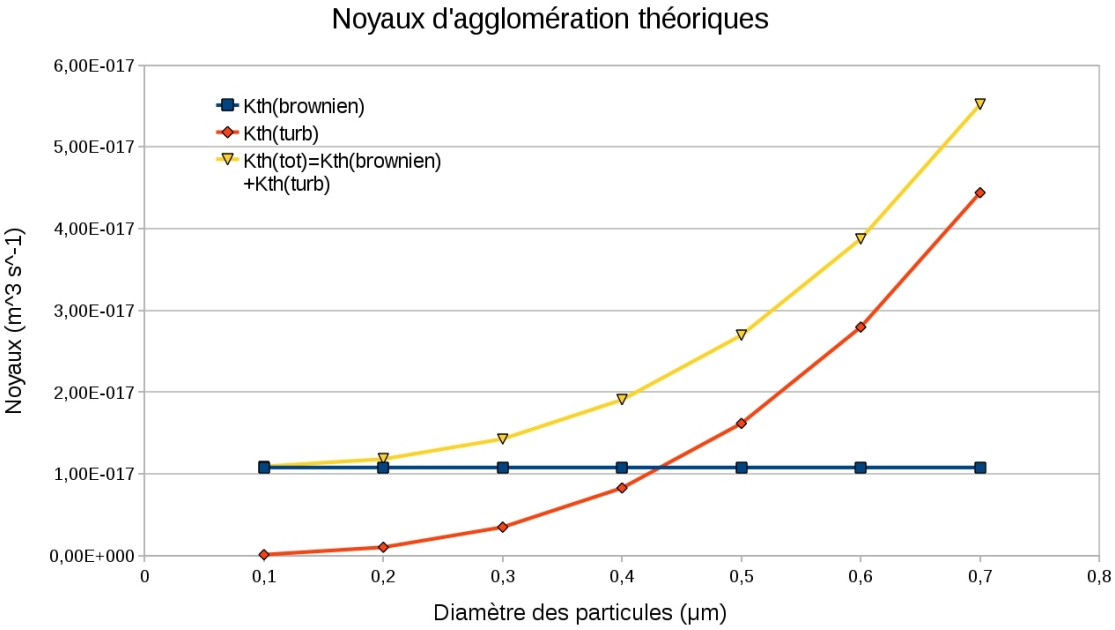


FIGURE 6.3 – Comparaison des noyaux d'agglomération brownien et turbulent pour un taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente $\epsilon_{\text{max}} = 10^{-2} m^2 s^{-3}$.

Ainsi, lorsque les trajectoires des particules isolées sont chacune des trajectoires diffusives, cette notion de diffusivité de paire ne pose aucun problème de construction. Mais que se passe-t-il lorsque le mouvement individuel des particules n'est pas soumis à une diffusion, comme c'est le cas pour les colloïdes dans un écoulement turbulent donné, par une DNS par exemple ?

En effet, comme rappelé à la Section 6.1, la taille caractéristique des colloïdes étant bien plus petite que l'échelle de taille des plus petits tourbillons de la turbulence, η_k (Eq. 6.2 et Système 6.3), chacune des particules est transportée par un écoulement laminaire cisaillé. Ainsi, aucune diffusion qui serait due à l'influence de petites échelles sous-jacentes n'apparaît directement sur la trajectoire des particules isolées. Néanmoins le cisaillement Γ_k, qui caractérise l'écoulement laminaire cisaillé existant sous la taille de Kolmogorov, fluctue au cours du temps avec une échelle de temps de l'ordre de τ_k. Ces variations en temps et en espace créent une diffusion relative pour les paires de particules colloïdales. Cette diffusivité relative est alors dépendante de la distance qui sépare les centres des deux particules, que nous allons noter r.

De récents travaux (Brunk, Koch et Lion, 1997; Brunk, Koch et Lion, 1998) apportent une étude complète de ce coefficient de diffusion d'une paire de colloïdes dans laquelle les contraintes de tension et de rotation, ainsi que les forces d'interactions de Van der Waals sont considérées distinctement. Lorsque les effets hydrodynamiques sont négligés, la forme générale de ce coefficient de diffusion de paire est :

$$D_{lm}(r) = \frac{\Gamma_k r}{60}\left[4\Gamma_k\tau_S\frac{r_l r_m}{r^2} + (3\Gamma_k\tau_S + 5\Gamma_k\tau_R)\left(\delta_{lm} - \frac{r_l r_m}{r^2}\right)\right], \tag{6.11}$$

où l et m désignent les directions de l'espace. Dans cette expression (Eq. 6.11), les temps de corrélations des taux de tension et de rotation sont distingués respectivement par τ_S et τ_R et δ_{lm} désigne le tenseur identité.

À partir de cette expression générale, une équation simplifiée pour l'évolution de la distance de séparation moyenne dans une turbulence homogène isotrope (THI) est (Russel, Saville et Schowalter, 1989) :

$$\frac{1}{2}\frac{d < r^2 >}{dt} = \frac{(\tau_S\Gamma_k)\Gamma_k}{15} < r^2 >, \tag{6.12}$$

il faut noter que $\tau_S\Gamma_k$ représente la contrainte totale, une constante qui caractérise l'écoulement fluide. Comme le montre l'équation 6.12 le coefficient de diffusion relative, pour une paire de particules i et j séparées par une distance r, se simplifie dans une THI en :

$$D_{ij}(r) = \frac{(\tau_S\Gamma_k)\Gamma_k}{15} < r^2 >, \tag{6.13}$$

qui montre la dépendance cruciale de ce coefficient de diffusion relatif au carré de la distance qui sépare les centres des deux particules :

$$D_{ij} \propto < r^2 > . \tag{6.14}$$

Cette expression 6.14 indique une propriété assez intuitive physiquement : la diffusivité d'une paire de particules dépend directement de la distance qui sépare les centres des deux solides. Autrement dit, plus les particules s'éloignent, plus la diffusivité de la paire est grande.

Ces développements montrent qu'il est possible de définir la diffusivité d'une paire de particules même lorsque chacun des partenaires ne suit pas individuellement une trajectoire purement diffusive. Le processus diffusif de la paire représente alors la distance qui sépare les

centres des particules. Nous montrons également que dans le cas d'une turbulence homogène isotrope, la littérature apporte que $D_{ij} \propto < r^2 >$. Nous devons maintenant adapter ces développements théoriques à notre méthode de traitement des collisions dans le cas d'un écoulement turbulent et brownien.

6.3.2 Diffusivité d'une paire de particules dans un écoulement turbulent

Dans le cas du mouvement brownien, par nature diffusif, la question de la construction du coefficient de diffusion relative ne s'est pas posée. En effet, chaque mouvement d'une particule isolée étant un processus de diffusion, le mouvement relatif de deux particules reste un processus de diffusion. Dans le cas de particules colloïdales dans un écoulement fluide turbulent, nous avons montré que, sous l'échelle de taille de Kolmogorov, chacune des trajectoires des colloïdes n'est pas nécessairement diffusive. Cependant, nous avons montré que les variations de l'écoulement induisent une diffusivité relative pour une paire de particules. Nous nous demandons maintenant comment utiliser ce coefficient dans la nouvelle méthode de traitement des collisions.

L'extension de la méthode de détection stochastique des collisions pour inclure ces phénomènes turbulents peut se construire en deux grandes étapes :

- la première étape consiste à supposer que la distance relative d'une paire de particules suit un processus de diffusion :

$$d\mathbf{X}_{p,ij} = B_{\text{pos},ij}(\mathbf{X}_{p,ij})d\mathbf{W}_t, \tag{6.15}$$

  alors simplement, le coefficient de diffusion est directement relié à la diffusivité D_{ij} qui a été introduite précédemment par $D_{ij} = 3B^2_{\text{pos},ij}$ (en trois dimensions).

- la seconde étape consiste à faire l'hypothèse que seule la valeur du coefficient de diffusion qui correspond au seuil de détection des collisions ($r = r_i + r_j$) est importante dans la nouvelle méthode. Lorsque les particules sont monodispersées cela revient à choisir $r = d_p$ dans l'expression générale de $B_{\text{pos},ij}(\mathbf{X}_{p,ij})$. En effet, la méthode de détection qui a été présentée dans la Section 5.3 a été développée dans le cas de coefficients qui ne dépendaient pas explicitement de la distance et nous faisons ici la conjecture que seule la valeur de ce coefficient évaluée à $r = d_p$ intervient véritablement. Une étude mathématique approfondie sur ce point devra être menée afin de montrer que la prise en compte de cette distance d_p comme distance de référence dans toute la nouvelle méthode de traitement stochastique est consistante. En d'autres termes, nous devons prouver par des développements stochastiques que dans notre algorithme de collision, la valeur des coefficients de diffusion des paires de particules peut être prise à la distance seuil de la collision $r_i + r_j$, égale à d_p dans le cas monodispersé. Cette démonstration complexe reste ouverte et aucune étude bibliographique connue n'apporte de réponse jusqu'à ce jour, c'est pourquoi nous en resterons au stade de la conjoncture pour ce qui nous concerne dans ce travail.

Il s'agit ensuite de renseigner la valeur du terme que l'on dénomme "*contrainte totale*", noté $\tau_S\Gamma_k$, dans le coefficient de diffusion de paire de la littérature (Brunk *et al.*, 1997). Cette contrainte totale est définie comme une constante. Nous fixons cette contrainte totale à la valeur :

$$\tau_S\Gamma_k = \sqrt{\frac{270}{\pi}} \simeq 9,27. \tag{6.16}$$

Cette valeur numérique de la contrainte totale (Eq. 6.16) correspond bien aux estimations données dans les travaux de Brunk *et al.* (1998) qui indiquent que le noyau de Saffman et Turner (1956) est obtenu pour une contrainte totale de l'ordre de $\tau_S \Gamma_k \simeq 10$.

Alors sous les hypothèses que nous venons de discuter, nous obtenons le coefficient de diffusion pour une paire suivant la relation :

$$B^2_{\text{pos},ij} = \frac{1}{3} D_{ij}(d_p) = \sqrt{\frac{2}{15\pi}} \Gamma_k d_p^2. \tag{6.17}$$

Il est théoriquement valable pour modéliser la diffusion qui existe sur la distance relative entre deux particules colloïdales dans un écoulement turbulent, dans le cadre de la méthode de traitement stochastique des collisions que nous avons présentée (Chapitre 5).

À partir de cette valeur (Eq. 6.16) et en utilisant le noyau de collision théorique d'un ensemble de particules monodispersées donné par (Friedlander, 2000) :

$$K_{\text{th}} = 2\pi B^2_{\text{pos,ij}} d_p, \tag{6.18}$$

il est facile de retrouver le noyau de collision obtenu dans une turbulence homogène isotrope issu de la littérature (Saffman et Turner, 1956) pour un ensemble de particules monodispersées :

$$K_{\text{th}}^{\text{turbulent}} = \sqrt{\frac{8\pi\epsilon}{15\nu_f}} d_p^3, \tag{6.19}$$

en utilisant comme gradient de vitesse de la turbulence $\Gamma_k = \sqrt{\frac{\epsilon}{\nu_f}}$.

Nous venons de montrer que dans une turbulence homogène isotrope, il est possible de définir une diffusivité de paire qui gouverne l'évolution de la distance relative entre deux particules. La valeur du coefficient de diffusion d'une paire de particules est donnée en s'appuyant sur la littérature existante pour une première analyse fonctionnelle. En précisant les termes issus de la littérature, comme la valeur constante de la contrainte totale, ainsi qu'en émettant l'hypothèse, non prouvée à ce jour, que la détection des collisions par la méthode stochastique nécessite de connaître ce coefficient de diffusion uniquement à la distance égale au seuil de rencontre des particules, nous pouvons donner une valeur utilisable dans les simulations pour la diffusion d'une paire de particules colloïdales. Même si cette valeur ne peut pas directement être utilisée pour simuler la trajectoire diffusive d'un colloïde dans un écoulement fluide turbulent, elle peut être utilisée directement dans la méthode de traitement stochastique des collisions que nous avons exposée. Avec les résultats de cette section, cette approche permet de retrouver de manière exacte les résultats de Saffman et Turner (1956).

6.4 La prise en compte des deux effets brownien et turbulent dans un unique processus de diffusion

Comme nous l'avons montré à la Section 6.2, les colloïdes sont sensibles dans une même mesure aux effets de la turbulence et à l'agitation thermique brownienne. Par la connaissance de chacun des coefficients de diffusion respectifs de ces deux phénomènes, nous pouvons imaginer un mouvement diffusif virtuel qui prendra en compte les deux effets précités. Alors, nous

TABLEAU 6.1 – Paramètres utilisés dans la simulation de validation du cas brownien et turbulent.

Variable	ϕ	L (m)	ϵ (m^2 s^{-3})	N_c^{th}	$\frac{\Delta t}{\tau_p}$	θ (K)
Valeur	$1,25 \times 10^{-5}$	10^{-4}	10^{-4}	2500	1000	$296,15$

obtenons simplement par la règle d'addition des variances la trajectoire définie de la manière suivante :

$$d\mathbf{X}_p = B_{\text{pos, global}} d\mathbf{W}_t, \tag{6.20}$$

avec

$$B^2_{\text{pos, global}} = B^2_{\text{pos, brownien}} + B^2_{\text{pos, turbulent}}, \tag{6.21}$$

$$= \frac{2k_B\theta\tau_p}{m_p} + \sqrt{\frac{\epsilon}{30\pi\nu_f}} d_p^2, \tag{6.22}$$

ce qui revient à écrire :

$$B_{\text{pos, global}} = \left(\frac{2k_B\theta\tau_p}{m_p} + \sqrt{\frac{\epsilon}{30\pi\nu_f}} d_p^2 \right)^{\frac{1}{2}}. \tag{6.23}$$

Finalement, il est facile de montrer en utilisant la relation Eq. 6.18 que cette modélisation des effets combinés de l'agitation brownienne et de l'agitation turbulente correspond à additionner simplement les noyaux d'agglomération théoriques $K_{\text{th}}^{\text{brownien}} + K_{\text{th}}^{\text{turbulent}}$ (Eq. 6.6 et Eq. 6.5). La figure 6.4 illustre un exemple de fonctionnement d'une simulation utilisant ce coefficient. Les paramètres de cette simulation sont exposés dans le Tableau 6.1. Pour ce calcul numérique, 27% des collisions proviennent de l'agitation brownienne et 73% des collisions proviennent de l'agitation turbulente.

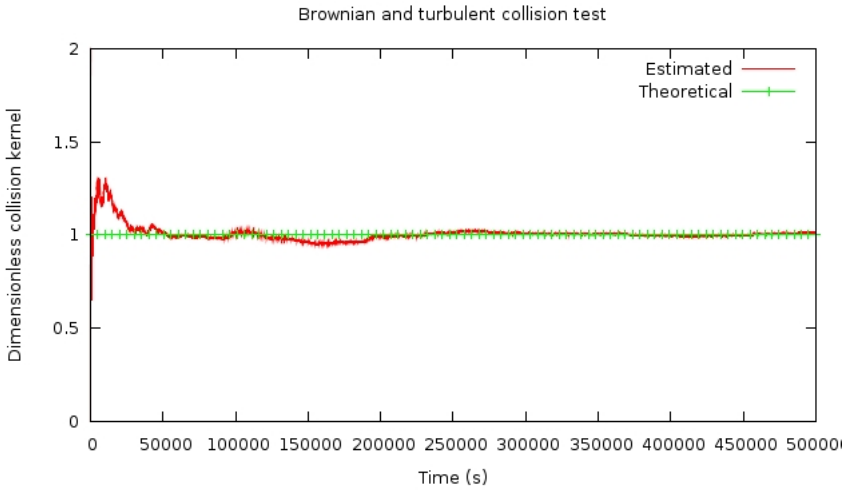


FIGURE 6.4 – Simulation numérique illustrant le bon fonctionnement du coefficient de diffusion brownien et turbulent - particules d'hématites de diamètre $d_p = 1\mu m$, masse volumique $\rho_p = 2700 kg/m^3$ dans de l'eau $\rho_f = 1000 kg/m^3$ et $\nu_f = 10^{-6} m^2/s$.

Nous pouvons noter que cette représentation possède l'énorme avantage d'adapter automatiquement la valeur du coefficient de diffusion global (Eq. 6.23) au cadre physique. En effet, étant l'addition d'une partie brownienne et d'une partie turbulente, l'importance relative de chacune de ces parties se calcule sans aucune intervention. Simplement, pour les plus petites particules qui seront presque exclusivement browniennes, nous aurons naturellement $B_{\text{pos, global}} \rightarrow B_{\text{pos, brownien}}$ et pour les plus grosses particules, plus sensibles à l'agitation de la turbulence qu'au mouvement brownien, nous aurons $B_{\text{pos, global}} \rightarrow B_{\text{pos, turbulent}}$.

Il faut cependant préciser que le coefficient de diffusion ainsi défini ne doit pas s'utiliser directement dans la simulation du mouvement d'une particule isolée. Même si le terme brownien est consistant avec la physique, le terme supplémentaire ajouté pour prendre en compte les effets turbulents représente essentiellement la diffusivité relative d'une paire de particules plutôt que la diffusion intrinsèque d'une particule isolée. Ce coefficient de diffusion peut être utilisé dans le calcul des grandeurs stochastiques qui apparaissent dans la méthode de traitement des collisions que nous avons présentée, mais ne doit pas être utilisé directement pour simuler le mouvement d'une particule isolée, tout du moins sans une étude approfondie préalable, qui n'a pas pu être effectuée dans ce travail.

Nous venons de montrer que nous pouvons écrire un coefficient de diffusion capable de prendre en compte les influences brownienne et de la turbulence dans une seule et unique expression. Cette expression s'adapte d'elle-même à l'inertie des particules, en tendant vers les valeurs limites brownienne et turbulente lorsque les particules tendent respectivement vers les petits et les grands diamètres. Cependant, étant donné la nouveauté de cette représentation et le peu de tests qui ont pu être effectués dans son utilisation pour le traitement des collisions, de nombreuses questions concernant ces développements restent ouvertes.

6.5 Conclusion partielle et questions ouvertes

Après des rappels sur quelques notions de base sur la turbulence, nous avons montré que l'agglomération de colloïdes due à l'agitation turbulente s'effectue à une échelle sub-Kolmogorov. Ce point de vue nous amène à penser que des développements nouveaux doivent être introduits pour prendre en compte ce phénomène dans le traitement stochastique de la collision.

Avant de se lancer dans ces nouveaux développements, nous avons effectué une analyse qualitative qui prouve que dans le cas des colloïdes, l'agglomération due à la turbulence du fluide est aussi importante que celle due à l'agitation thermique. Il est donc nécessaire de s'intéresser plus en détail à une modélisation des effets de la turbulence sur les particules colloïdales en accord avec notre méthode stochastique de traitement des collisions.

Comme expliqué dans ce chapitre, la taille des colloïdes étant très inférieure à celle des plus petits tourbillons de la turbulence, ce type de particules est alors transporté dans un mouvement qui n'est pas nécessairement diffusif. Cependant, la méthode de simulation des collisions peut toujours être appliquée en utilisant la diffusion relative à une paire de particules, et non sur une particule isolée. En s'appuyant sur de nombreux travaux de la littérature (Brunk *et al.*, 1997; Russel *et al.*, 1989; Brunk *et al.*, 1998), nous pouvons donner la valeur du coefficient de diffusion d'une paire de particules colloïdales dans un écoulement turbulent homogène isotrope. Néanmoins, ce calcul est fait en supposant que la valeur de ce coefficient de diffusion d'une paire peut être calculée à une distance relative qui correspond au choc des particules. Cette

hypothèse n'est toujours pas prouvée mathématiquement à ce jour et nécessite des calculs plus approfondis ou des validations numériques, dans le but d'une généralisation. Des précautions sont à prendre en ce sens car les développements stochastiques pourraient réduire les limites de validité de l'algorithme de collision.

Chapitre 7

Pistes de reflexion et questions ouvertes

La nouveauté de la méthode de traitement des collisions proposée dans ce document ouvre des pistes de réflexion en ce qui concerne les traitements stochastiques appliqués à la physique de l'agglomération. Les hypothèses de calculs mathématiques doivent être interprétées dans un cadre appliqué, ce qui nécessite parfois des adaptations au niveau de la méthode ou des conjectures. Dans tous les cas, un effort doit être fait pour comprendre le lien fort qui existe entre les situations physiques et les développements mathématiques qui permettent de renseigner les expressions des grandeurs stochastiques définies.

D'abord, nous allons exposer les questions ouvertes issues directement de la méthode que nous avons proposée pour prédire le taux de collision de manière stochastique. Ensuite, nous nous interrogerons sur l'application de ce type de développement sur un processus stochastique très utilisé dans la représentation de phénomènes physiques, celui d'un processus brownien amorti, appelé processus d'Ornstein-Uhlenbeck.

7.1 L'utilisation de la nouvelle méthode sur une trajectoire diffusive pure

La méthode a été développée puis validée dans un premier temps sur le cas d'un ensemble de particules soumis exclusivement au mouvement brownien pur. Un tel mouvement est représenté par un processus de diffusion et il semble être la façon la plus naturelle de valider notre algorithme (Section 5.3.2). Ensuite, nous avons montré que la nouvelle méthode est capable de traiter le cas de processus de diffusion à coefficients constants (Section 5.3.2), puis nous nous sommes intéressés au cas de l'agglomération sous l'influence de la turbulence d'un écoulement fluide. La solution que nous avons proposée dans ce cas fait intervenir la notion de diffusivité relative à une paire de particules, qui pour être utilisable dans les simulations numériques que nous utilisons en respectant le cadre des développements mathématiques, doit se soumettre à quelques conjectures. Ces hypothèses laissent néanmoins quelques questions sans réponse à l'heure actuelle.

7.1.1 La conjecture sur la diffusivité relative

Comme exposé à la Section 6.3, même dans le cas où chaque particule ne suit pas individuellement une trajectoire diffusive, il est possible d'imaginer un processus de diffusion qui représente la distance relative d'une paire de particules. Cette diffusivité relative est alors dépendante de la distance qui sépare les centres des deux partenaires d'une collision, que nous avons notée r.

Cette distance variable au cours du temps, qui intervient dans l'expression du coefficient de diffusion relatif, ne permet pas de l'utiliser directement dans notre méthode de traitement stochastique. En effet, ce coefficient de diffusion doit avoir une valeur fixe lors de l'estimation des grandeurs stochastiques de la collision, que sont la probabilité de rencontre et les estimations de l'instant et du lieu de la collision. Nous avons alors établi le postulat que cette diffusivité n'intervient pour la collision qu'à la distance de rencontre des deux particules, autrement dit à $r = r_i + r_j$ ou à $r = d_p$ dans le cas d'un ensemble de particules monodispersées.

Cette conjecture peut trouver une justification physique. En effet, il semble naturel de penser que le coefficient de diffusion évalué à n'importe quelle distance $r > d_p$ n'a aucune influence sur la détection d'une collision à $r = d_p$. Néanmoins, une justification mathématique à partir de développements stochastiques viendrait confirmer cette hypothèse et permettrait de s'assurer que le traitement des collisions que nous avons élaboré n'est pas dépendant des valeurs de la diffusivité relative lorsque $r > d_p$. Il faut remarquer que lorsque $r < d_p$, alors la collision est inconditionnelle et se traite par recouvrement.

7.1.2 Diffusivité relative de phénomènes physiques autres que la turbulence et le mouvement brownien

À la manière de ce que nous avons fait pour traiter la collision de particules soumises à la turbulence (Section 6.3.2), il est tout à fait possible que les collisions issues d'autres phénomènes physiques puissent être traitées par la nouvelle méthode stochastique. Pour ce faire, sous les mêmes hypothèses que pour la turbulence (Section 6.3.2), il faudrait renseigner le coefficient de diffusion de la paire de particules. Il est alors nécessaire de considérer au cas par cas les cadres physiques étudiés afin de se demander si le phénomène observé peut faire correspondre un mouvement diffusif sur la position relative des particules.

7.2 L'utilisation de la nouvelle méthode sur une trajectoire diffusive amortie

Le nouvel algorithme de traitement des collisions est basé sur l'hypothèse que la distance relative entre deux particules suit un processus purement diffusif, ce qui entraîne que la norme relative de la distance qui sépare ces deux particules suit un processus de Bessel de dimension trois. Nous allons montrer dans ce paragraphe que l'étude que nous avons faite dans ce cadre théorique stochastique pourrait être complétée en appliquant le même raisonnement sur d'autres processus que le processus brownien pure et sa norme, le processus de Bessel.

7.2.1 Probabilité de passage d'un seuil pour un mouvement brownien amorti

La nouvelle méthode stochastique de traitement des collisions que nous avons exposée est développée pour des trajectoires diffusives pures, ce qui correspond au cas limite $\tau_p \ll \Delta t$ dans le schéma numérique que nous avons choisi pour simuler le mouvement (Section 1.3.2). Cependant plus généralement, ce sont les équations de Langevin qui dirigent le mouvement des particules dans chacun des régimes de déplacement (diffusif et balistique). Ces équations du mouvement sont (rappel de Eq. 1.15) :

$$\begin{cases} d\mathbf{X_p}(t) = \mathbf{U_p}(t)dt, \\ d\mathbf{U_p}(t) = \left[\dfrac{\mathbf{U_s}(t) - \mathbf{U_p}(t)}{\tau_p}\right] dt + (B \cdot \mathbf{I})d\mathbf{W}_t. \end{cases} \tag{7.1}$$

En termes stochastiques, ces équations consistent à utiliser un processus d'Ornstein-Uhlenbeck, aussi appelé processus brownien amorti, sur la vitesse des particules. La position est alors l'intégration de ce processus dans le temps.

Le schéma numérique que nous avons appliqué à ces équations permet de simuler toute la gamme des régimes de déplacements, du régime diffusif au régime balistique, sans aucune modification des équations. La méthode de traitement stochastique que nous avons établie dans le cas limite diffusif se combine naturellement à l'algorithme par recouvrement (Section 5.3). Néanmoins, même si les deux cas limites balistique et diffusif sont bien pris en compte, il apparaît que le passage de l'un à l'autre de ces régimes de déplacement se fait par une coupure au niveau de la probabilité de rencontre, comme le montre l'équation 5.15. Il convient donc de se demander si la méthode présentée dans ce document n'apporterait pas des avantages à être appliquée précisément sur la position d'une particule telle qu'elle est définie par le schéma numérique. En d'autres termes, si nous pouvions calculer les grandeurs stochastiques que nous avons utilisées dans la méthode (la probabilité de rencontre, l'instant et le lieu de la collision) pour l'intégrale d'un processus stochastique d'Ornstein-Uhlenbeck (la position dans la modélisation), nous pourrions appliquer la méthode sur toute la gamme de régime de déplacement sans aucune distinction de traitement dans les simulations. Ces calculs stochastiques n'apparaissent dans aucune référence bibliographique connue et leurs développements ne sont pas triviaux, ce qui explique qu'aucune réponse à cette question ne peut être apportée pour l'heure.

D'autre part, ce travail a été effectué dans le but de traiter l'agglomération des particules colloïdales. Nous avons choisi de prendre en compte les forces d'interactions estimées par la théorie DLVO (Derjaguin et Landau, 1941; Verwey et Overbeek, 1948), comme nous l'avons présenté à la Section 1.2.3. L'utilisation de cette théorie dans les simulations numériques prévues se résume à comparer le potentiel écran issu de DLVO (aussi nommé *barrière d'énergie*) à la valeur de l'énergie cinétique relative des deux particules qui entrent en collision (Section 1.2.4), dont le calcul est exposé en Annexe C. Dans celui-ci, l'énergie cinétique relative est évaluée à l'endroit de la collision et son expression est déduite de la connaissance des vitesses des particules à cet instant et en ce lieu. Donc de la même manière que précédemment, il serait utile d'avoir l'expression analytique de la probabilité de passage d'un seuil donné pour la norme d'un processus d'Ornstein-Uhlenbeck, nommé communément processus d'Ornstein-Uhlenbeck radial. En effet, ce processus appliqué à la vitesse relative d'une paire de particules permettrait le calcul de l'énergie cinétique relative (Annexe C), afin de comparer sa valeur au potentiel écran issu de DLVO. En d'autres termes, le calcul d'une probabilité de passage d'un seuil donné, qui prendrait la valeur de ce potentiel écran (la barrière d'énergie DLVO), donnerait directement *la*

probabilité d'agglomération de deux particules sachant qu'elles se collisionnent, à partir des forces d'interactions de la théorie DLVO.

7.2.2 Noyau de collision théorique d'un mouvement brownien amorti

Dans le même ordre d'idée, il est primordial de se demander à quelle expression théorique du taux de rencontre nous pouvons comparer les résultats qui concernent le mouvement brownien amorti. En effet, même si la littérature donne le taux de collision lorsque la distance relative des deux particules s'apparente à un processus de diffusion (Friedlander, 2000) par $K_{\text{th}} = 2\pi B_{ij}^2 dp$, nous n'avons aucune information sur ce taux de collision théorique pour un processus diffusif autre que le brownien pur.

L'intérêt potentiel de cette méthode réside dans l'étude et la prédiction des noyaux de collisions théoriques lorsque le mouvement des particules suit les équations de Langevin (Système 7.1), ou lorsque que la trajectoire des particules suit directement un processus brownien amorti. Maintenant que la méthode est validée, l'expression de la probabilité de rencontre pour un processus d'Ornstein-Uhlenbeck permettrait de prédire les noyaux théoriques dans ce cadre.

7.3 Conclusion partielle

Par la nouveauté des travaux présentés, des questions ouvertes apparaissent et elles méritent une attention particulière dans les développements futurs. Dans un premier temps, des conjectures ont été établies afin de pouvoir appliquer la méthode de traitement stochastique des collisions dans le cadre théorique que nous avons présenté, autrement dit celui d'un déplacement relatif des deux partenaires de la collision purement diffusif. Dans ce même cadre théorique, nous pouvons également nous demander s'il est possible de prendre en compte d'autres phénomènes physiques que ceux qui ont été exposés dans ce document.

Pour le traitement complet de l'agglomération, il apparaît nécessaire de s'intéresser aux grandeurs stochastiques que nous avons utilisées dans la méthode de traitement des collisions, dans le cas du processus brownien amorti, dénommé aussi processus d'Ornstein-Uhlenbeck. En effet, le traitement de l'agglomération nécessite une estimation des vitesses à l'instant et au lieu de la collision et ces dernières suivent chacune un processus brownien amorti. L'énergie cinétique relative calculée à partir de la norme de la vitesse relative pourrait être comparée à la barrière d'énergie de DLVO au moyen d'une probabilité de passage de ce seuil écran, qui empêche ou non l'agglomération à partir des forces d'interactions DLVO. Cette probabilité de passage de la barrière d'énergie correspond exactement à la même définition mathématique que la probabilité de collision que nous avons utilisée dans la méthode stochastique, mais appliquée à un processus d'Ornstein-Uhlenbeck. Dans ce cas, la question du taux de passage théorique de ce seuil, autrement appelé taux de rencontre ou taux de collision dans ce document, doit être considérée afin de pouvoir valider les résultats qui seront obtenus.

Conclusion générale

Ce travail a été effectué dans le but de proposer une solution capable de prendre en compte le phénomène d'agglomération des colloïdes dans un écoulement turbulent par la simulation numérique. Le traitement de la phase fluide est supposé s'effectuer par un code de simulation directe (DNS), ce qui permet de connaître les propriétés du fluide à chaque instant et en tout point de l'espace et de s'intéresser exclusivement à la phase d'agglomération des particules. Pour ces particules solides la gamme colloïdale ($d_p \in [0, 1\mu m - 2\mu m]$) est privilégiée pour les raisonnements, ce qui permet de restreindre les phénomènes physiques moteurs du mouvement à l'agitation brownienne et à la turbulence du fluide. Avec la perspective d'une utilisation dans le domaine de l'ingénierie nucléaire, l'étude proposée s'attache à rester dans un cadre très général, ce qui permet son application à d'autres domaines de recherches.

Dans la première partie, les bases de la modélisation sont exposées et analysées. Les équations de Langevin sont retenues pour modéliser le mouvement des colloïdes dans un écoulement turbulent et la théorie DLVO permet de renseigner les forces d'interactions entre les particules. La mise en œuvre numérique de ces méthodes est abordée, d'abord par l'utilisation d'un schéma numérique inconditionnellement stable par rapport au choix du pas de temps relativement au temps de relaxation des particules, puis par l'utilisation du potentiel écran issu de la théorie DLVO comparée à l'énergie cinétique relative des particules, pour le traitement effectif de l'agglomération. Ensuite, une brève présentation de la méthode de traitement de l'agglomération macroscopique, autrement appelée méthode des noyaux d'agglomération, est exposée. Nous choisissons de valider notre méthode lagrangienne par la convergence des statistiques de la phase d'agglomération vers la méthode des noyaux d'agglomération. Dans ce cadre de validation, la première phase de traitement est d'utiliser un algorithme de détection des collisions entre les particules solides. Les algorithmes existants dans la littérature sont implémentés et testés sur un ensemble de particules colloïdales et les coûts numériques engendrés sont analysés. Même si les noyaux de collision théoriques sont retrouvés, les coûts de calculs sont inversement proportionnels au diamètre des particules et augmentent considérablement lorsque le diamètre diminue. De plus, il est exposé que ces méthodes existantes ne peuvent pas fonctionner avec les caractéristiques de stabilité du schéma numérique que nous utilisons, à savoir donner des résultats statistiques satisfaisants quel que soit le pas de temps de la simulation choisi par rapport au temps de relaxation des particules.

Dans la seconde partie de ce document, une nouvelle méthode est développée pour traiter efficacement les collisions de particules colloïdales. Basée sur la trajectoire réelle de ce type de particules entre deux instants donnés, les phénomènes physiques prépondérants pris en compte sont l'agitation brownienne et la turbulence du fluide. Il est montré que lorsque le pas de temps des simulations est très supérieur au temps de relaxation des particules, le mouvement relatif des deux particules issu du schéma numérique utilisé est un phénomène diffusif, ce

qui fait notamment intervenir la notion de *pont diffusif* entre les deux positions initiale et finale. Ainsi, des développements stochastiques permettent de donner la probabilité de rencontre de deux colloïdes, qui est la probabilité théorique de l'événement *"le processus stochastique qui représente la distance relative passe sous le seuil de contact* $r_i + r_j$ *durant un pas de temps* Δt*, connaissant les positions relatives initiale et finale"*. Cette détection des collisions est complétée par une étape de prédiction-correction sur la position finale de chacun des partenaires de la collision, ce qui correspond au traitement d'une collision élastique. C'est une étape essentielle dans la prise en compte de l'ensemble de la phase d'agglomération qui intervient dès lors qu'une adhésion ne sera pas effective, lorsqu'elle est empêchée par la barrière d'énergie issue de la théorie DLVO par exemple. Pour ce traitement de la collision élastique, l'estimation stochastique de l'instant de collision est nécessaire. En termes stochastiques, cet instant est le *premier temps de passage du processus stochastique sous le seuil donné*. À partir de cette estimation de l'instant de la collision, le mouvement du barycentre des deux particules diffusives est calculé de manière stochastique afin de renseigner le lieu de la collision dans l'espace. La méthode développée, testée et validée sur le cas du mouvement brownien pur, qui représente naturellement une diffusion, est étendue au cas de l'agglomération due à la turbulence du fluide en introduisant la notion de *diffusivité relative* pour une paire de particules. Cette notion montre qu'en respectant certaines hypothèses, il est possible de considérer un processus de diffusion à coefficient constant sur une paire de particules même lorsque, comme c'est le cas pour des colloïdes transportés par un écoulement turbulent, chacune des trajectoires des particules n'est pas individuellement diffusive. Néanmoins, certaines conjectures restent sans justification mathématique à la date d'écriture de ce document et cette nouvelle modélisation soulève des questions qui nécessitent des réponses en vue d'une généralisation complète de la méthode de traitement stochastique exposée.

Finalement, la méthode proposée est un nouvel algorithme de traitement des collisions qui considère les chemins probables des particules diffusives entre deux instants donnés. Pour ce faire, la nature stochastique des processus de diffusion nécessite de traiter le problème en terme de probabilité de rencontre et d'estimations probabilistes des instant et lieu de la collision. La nouvelle méthodologie est construite dans le but de généraliser ce traitement à une large gamme de diamètres pour les particules, ce qui se traduit techniquement par une connexion naturelle de l'algorithme proposé avec les algorithmes de traitement des collisions par recouvrement, connus et approuvés pour leur efficacité lorsque les diamètres des particules deviennent relativement grands par rapport aux colloïdes. **Il en ressort que nous proposons une méthode unique capable de traiter la collision d'un ensemble de particules couvrant une large gamme de diamètres et d'inertie, en s'adaptant naturellement aux caractéristiques physiques de chacune des particules, en vu d'être capable de simuler efficacement l'agglomération des colloïdes dans les écoulements turbulents.**

Il faut aussi noter l'importance de la capacité potentielle de la méthodologie stochastique présentée à trouver les noyaux de collision et d'agglomération d'écoulements complexes. En effet, même si le travail exposé ici est élaboré et validé dans des cas théoriques simples et pour lesquels le taux de collision est connu, le caractère général de la méthode proposée permet d'orienter les développements futurs vers des études de plus en plus complexes concernant la simulation du phénomène d'agglomération. En effet, la finesse du traitement de la collision exposé dans ce document permet de calculer, à travers des expériences numériques faites par des simulations numériques directes, les noyaux de collisions dans le cas d'écoulements non-homogènes ou lorsque l'agglomération totale résulte de plusieurs phénomènes mélangés, qui ne peuvent pas êtres traités de manière indépendantes comme ce qui est proposée par la

méthode des noyaux. En effet, allié à un code de calcul DNS pour la partie fluide, le suivi lagrangien et l'algorithme de collision proposés sont une base considérable pour l'étude approfondie des taux d'agglomération des particules colloïdales transportées par un écoulement fluide. De la même manière, la finesse spatiale de l'estimation du traitement stochastique qui est présenté permet la prise en compte des forces d'interactions qui agissent à des échelles très petites par rapport à l'écoulement fluide et aux particules elles-mêmes. Nous avons choisi d'utiliser la théorie DLVO pour prendre en compte ces interactions électro-chimiques, mais le caractère général de l'algorithme permet de considérer d'autres types d'interactions chimiques du moment que les seules grandeurs nécessaires sont les vitesses et les positions des particules au point d'impact. **La méthode exposée ici est développée et validée sur des cas physiques simples mais elle possède un caractère générale intrinsèque qui permet potentiellement de répondre à ces questions qui concernent les noyaux d'agglomération complexes et de l'étude des phénomènes chimiques.**

Concrètement, le travail présenté propose une collection d'outils directement disponible pour le traitement de l'agglomération dans le cadre d'un code de calcul de type DNS pour le fluide avec un suivi lagrangien des particules. Le champs fluide est alors considéré comme une donnée en tout point à chaque instant. La méthode proposée peut alors s'appliquer sur le suivi lagrangien des particules, indépendamment du comportement du fluide. Pour une utilisation pratique dans le cadre de l'étude de l'agglomération, l'estimation des vitesses des particules peut se faire grâce au schéma numérique exposé (Section 1.3.2) et le phénomène d'agglomération peut être modélisé pour une application numérique par la théorie DLVO, comme exposé dans la Section 1.2.4. Ainsi, indépendamment de la simulation de l'écoulement fluide, la technique proposée peut être appliquée dans le but de réaliser des expériences numériques capables d'extraire des noyaux d'agglomération dans des cadres physiques complexes. Ainsi, l'objectif final qui consiste à alimenter les méthodes macroscopiques (qui nécessitent la connaissance des noyaux d'agglomération), est envisageable à court terme.

Pour conclure, le chapitre 7 soulève des questionnements techniques qui seront nécessaires pour finaliser le travail et proposer un traitement global et complet de l'agglomération des particules colloïdales. Ces développements futurs demanderont de faire intervenir des connaissances approfondies en physique des fluides et en chimie des interactions, ainsi qu'en calcul stochastique pour compléter la méthode dans la voie qui a été choisie. Ce travail est un bel exemple de synergie entre des domaines scientifiques éloignés dont la convergence permet la résolution d'un problème concret qui possède de nombreuses applications universitaires et industrielles.

Appendices

Annexe A

Calcul du coefficient de diffusion B du mouvement Brownien pur

Nous allons calculer la valeur du coefficient de diffusion dans le cas du mouvement Brownien pur. Pour rappel, les équations de Langevin sont (en 1D avec $\mathbf{U_s}(t) = 0$) :

$$\begin{cases} d\mathbf{X_p}(t) = \mathbf{U_p}(t)dt, \\ d\mathbf{U_p}(t) = -\dfrac{\mathbf{U_p}(t)}{\tau_p}\, dt + Bd\mathbf{W}_t, \end{cases} \tag{A.1}$$

Notons qu'à l'équilibre thermique, l'énergie cinétique moyenne de l'ensemble des particules vaut :

$$\frac{1}{2}m_p\mathbb{V}(\mathbf{U_p}(t)) = \frac{1}{2}\frac{R\theta}{\mathcal{N}}. \tag{A.2}$$

Or par définition, la constante de Boltzmann vaut $k_B = \frac{R}{\mathcal{N}}$, donc :

$$\mathbb{V}(\mathbf{U_p}(t)) = \frac{k_B\theta}{m_p}. \tag{A.3}$$

L'expression théorique de la variance d'un processus d'Ornstein-Ulhenbeck (Tanière, 2010) :

$$\mathbb{V}(\mathbf{U_p}(t)) = \frac{B^2\tau_p}{2}. \tag{A.4}$$

Il vient que :

$$B^2 = \frac{2k_B\theta}{m_p\tau_p}. \tag{A.5}$$

Annexe B

Le modèle de double couche

Parmi les interactions particulaires de nature électrique, celle qui intervient lorsque les particules sont le plus proche les unes des autres est issue de la théorie de la double couche. Mise en exergue par Israelachvili (1991), cette vision encore controversée, influe sur le caractère stable ou instable des agglomérats de colloïdes dans la solution. Les idées établies par Israelachvili (1991) sont expliquées plus simplement par DiMeglio (1998).

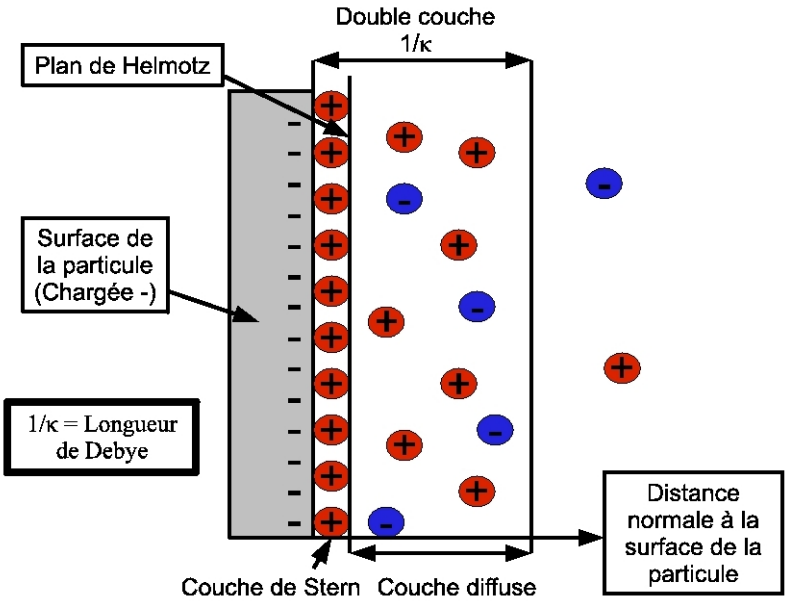


FIGURE B.1 – Représentation de la double couche électrique - Le signe des charges peut être inversé.

Pour une surface chargée (paroi ou particule), des cations de la solution de charge opposée à celle de la surface vont être attirés pour tendre vers l'électroneutralité aux alentours de cette dernière. Ceci s'établi dans deux zones, visibles sur la Figure B.1. La couche de Stern, dont l'existence même est remise en cause car aucune expérience physique n'a encore prouvé sa

présence, correspond à une mince couche de cations immobiles collés à la surface ; alors que la couche diffuse correspond à une zone de cations mobiles relativement éloignés de la surface en question, mais assez proches pour jouer un rôle dans l'électroneutralité du milieu avoisinant. Les deux couches sont séparées par le plan de Helmholtz, qui donne une indication sur la manière dont décroît le potentiel avec la distance à la surface. Dans la couche de Stern, il décroît linéairement alors que dans la couche diffuse, la décroissance sera plus rapide sous la forme d'une exponentielle.

Cet ensemble correspond au modèle de double couche qui crée un potentiel électrique autour de la surface considérée avec le mouvement des cations proche de la surface. Le modèle de double couche est un phénomène d'interaction moléculaire étant identifié comme une origine majeure des interactions entre particules chargées. Cependant, étant donné l'échelle de taille à laquelle il est observable, c'est au moyen de la théorie établie par Derjaguin et Landau (1941) et Verwey et Overbeek (1948) que nous pourrons la modéliser afin de l'appliquer dans les simulations d'écoulements turbulents.

Annexe C

Calcul de l'énergie cinétique relative de deux particules

Ce chapitre montre comment calculer l'énergie cinétique relative à deux particules afin de la comparer à la valeur de la barrière d"énergie issue de la théorie DLVO dans le traitement de l'agglomération, comme nous l'expliquons dans la Section 1.2.4.

Nous définissons le contexte du calcul sur la figure C.1. Le centre de masse des particules A_1 et A_2 de masses respectives m_1 et m_2 est le point de l'espace noté C. Le référentiel de base est noté $R(O, x_1, x_2, x_3)$ et le référentiel du centre de masse est noté $R^*(C, x_1^*, x_2^*, x_3^*)$.

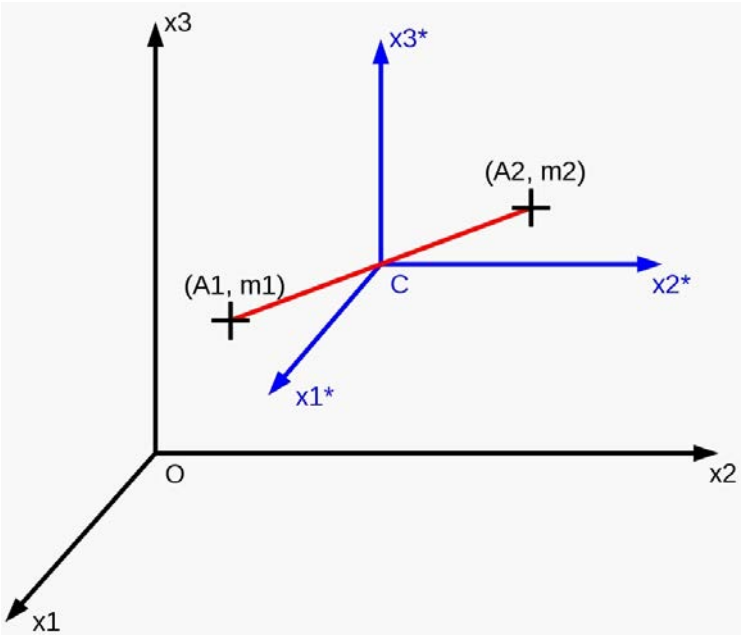


FIGURE C.1 – Schéma représentatif des référentiels utilisés dans le calcul de l'énergie cinétique relative à deux particules.

Comme C est le centre de masse des particules A_1 et A_2, par définition :

$$\begin{cases} m_1\vec{\mathbf{OA_1}} + m_2\vec{\mathbf{OA_2}} = (m_1+m_2)\vec{\mathbf{OC}}, \\ m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} + m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R}} = (m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}. \end{cases} \tag{C.1}$$

Dans R^* la quantité de mouvement du centre de masse, notée P^*, est nulle :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{P}^*} &= \vec{\mathbf{P}_{A_1/R^*}} + \vec{\mathbf{P}_{A_2/R^*}}, \\ &= m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} + m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}, \\ &= 0. \end{aligned} \tag{C.2}$$

Sachant que $\vec{V}_{\text{absolue}} = \vec{V}_{\text{entrainement}} + \vec{V}_{\text{relative}}$, calculons l'énergie cinétique absolue (dans le référentiel R) du centre de masse :

$$\begin{aligned} E_{C/R} &= \frac{1}{2}m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}}^2 + \frac{1}{2}m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}^2, \\ &= \frac{1}{2}m_1(\vec{\mathbf{V}_{C/R}} + \vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}})^2 + \frac{1}{2}m_2(\vec{\mathbf{V}_{C/R}} + \vec{\mathbf{V}_{A_2/R^*}})^2, \\ &= \frac{1}{2}m_1\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}m_2\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \vec{\mathbf{V}_{C/R}}\left(m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}} + m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R^*}}\right) \\ &\quad + \frac{1}{2}m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}}^2 + \frac{1}{2}m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R^*}}^2. \end{aligned} \tag{C.3}$$

Or, d'après l'équation C.2, nous savons que :

$$\left(m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}} + m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R^*}}\right) = 0. \tag{C.4}$$

Nous en déduisons que :

$$E_{C/R} = \frac{1}{2}(m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}}^2 + \frac{1}{2}m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R^*}}^2. \tag{C.5}$$

Ensuite, en remarquant que :

$$\vec{\mathbf{P}_{A_i/R^*}} = m_i\vec{\mathbf{V}_{A_i/R^*}} \qquad (i = 1, 2), \tag{C.6}$$

et que :

$$\vec{\mathbf{P}_{A_1/R^*}} = -\vec{\mathbf{P}_{A_2/R^*}}, \tag{C.7}$$

nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} E_{C/R} &= \frac{1}{2}(m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}}^2 + \frac{1}{2}m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R^*}}^2, \\ &= \frac{1}{2}(m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}\frac{\vec{\mathbf{P}_{A_1/R^*}}^2}{m_1} + \frac{\vec{\mathbf{P}_{A_2/R^*}}^2}{m_2}, \\ &= \frac{1}{2}(m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}\left(\frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2}\right)\vec{\mathbf{P}_{A_1/R^*}}^2. \end{aligned} \tag{C.8}$$

Par définition, $\vec{\mathbf{P}_{A_1/R^*}} = m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R^*}}$ donc :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{P}_{A_1/R^*}} &= m_1\left(\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} - \vec{\mathbf{V}_{C/R}}\right), \\ &= m_1\left(\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} - \frac{m_1\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} + m_2\vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}}{(m_1+m_2)}\right), \\ &= \frac{m_1m_2}{m_1+m_2}\left(\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} - \vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}\right). \end{aligned} \tag{C.9}$$

On en déduit que :

$$E_{C/R} = \frac{1}{2}(m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}\left(\frac{m_1+m_2}{m_1 m_2}\right)\left(\frac{m_1 m_2}{m_1+m_2}\right)^2\left(\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} - \vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}\right)^2, \qquad \text{(C.10)}$$

soit :

$$\begin{aligned} E_{C/R} &= \frac{1}{2}(m_1+m_2)\vec{\mathbf{V}_{C/R}}^2 + \frac{1}{2}\frac{m_1 m_2}{m_1+m_2}\left(\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} - \vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}\right)^2, && \text{(C.11)} \\ &= \text{Energie cinétique d'entrainement} + \text{Energie cinétique relative.} && \text{(C.12)} \end{aligned}$$

Donc pour résumer, l'expression de l'énergie cinétique relative à deux particules A_1 et A_2 de masses respectives m_1 et m_2 est :

$$E^{\text{rel}}_{C/R} = \frac{1}{2}\frac{m_1 m_2}{m_1+m_2}\left(\vec{\mathbf{V}_{A_1/R}} - \vec{\mathbf{V}_{A_2/R}}\right)^2. \qquad \text{(C.13)}$$

Annexe D

Validation du schéma d'intégration

Les aspects théoriques qui résident dans les équations de Langevin que nous avons retenues (Eqs. 1.15) relèvent du calcul probabiliste. La vitesse d'une particule est modélisée par l'action des forces browniennes aléatoires et de la force de traînée déterministe. Dans le domaine stochastique, ce type de processus est bien connu sous le nom de "mouvement brownien avec amortissement" (Brownian motion with drift) ou "processus d'Ornstein-Uhlenbeck". Les statistiques d'un tel processus sont bien connues dans la littérature (Tanière, 2010; Borodin et Salminen, 2002; Gardiner, 1985) et vont nous permettre de vérifier la convergence du schéma vers les cas limites exposés ci dessus par des simulations. De la même manière, nous verrons que la variable qui représente la position des particules dans les équations de Langevin (Eqs. 1.15), calculée comme l'intégrale de la vitesse au cours du temps, se comporte conformément à la théorie (Tanière, 2010; Borodin et Salminen, 2002; Gardiner, 1985).

D.1 Statistiques du mouvement brownien aux temps courts

Aux temps courts, autrement dit lorsque le temps courant t est bien plus petit que le temps caractéristique physique du mouvement brownien (*i.e.* le temps de relaxation τ_p pour les particules), l'espérance $\mathbb{E}$, la variance $\mathbb{V}$ et la variance à l'équilibre thermique de la vitesse $\mathbb{V}^{\text{eq th}}$ sont connues (Tanière, 2010) pour la variable vitesse des équations de Langevin $\mathbf{U}_p(t)$, qui suit un processus stochastique d'Ornstein-Uhlenbeck :

$$\mathbb{E}(\mathbf{U}_p(t)) = \mathbf{U}_p(0)\exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right), \tag{D.1}$$

$$\mathbb{V}(\mathbf{U}_p(t)) = \frac{B^2\tau_p}{2}\left[1-\exp\left(-\frac{2t}{\tau_p}\right)\right], \tag{D.2}$$

$$\mathbb{V}^{\text{eq th}}(\mathbf{U}_p(t)) = \frac{B^2\tau_p}{2}. \tag{D.3}$$

Des simulations ont été menées afin de prouver la convergence du schéma utilisé vers les statistiques théoriques du processus d'Ornstein-Uhlenbeck. Les paramètres constants des simulations sont résumés dans la Table. D.1. Les résultats qui représentent l'espérance et la variance de la vitesse sont exposés comparativement à la théorie respectivement sur les figures D.1 et D.2.

TABLEAU D.1 – Paramètres utilisés dans les simulations - temps courts.

Nombre de particules	10000
$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	1000
d_p	$1\mu m$
τ_p	$3 \times 10^{-6} s$
Δt	$10^{-10} s$
t_{max}	$10^{-5} s$

De la même manière, nous pouvons analyser le comportement de la variable position, notée $\mathbf{X}_p(t)$, aux temps courts. D'après la littérature (Tanière, 2010), nous pouvons donner les expressions de l'espérance, de la variance et la valeur à l'équilibre thermique de la position d'une particule. En termes stochastiques, cette position est simplement l'intégrale de la vitesse (processus d'Ornstein-Uhlenbeck) dans le temps. Nous obtenons :

$$\mathbb{E}(\mathbf{X}_p(t)) = \mathbf{U}_p(0)\tau_p \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right)\right], \tag{D.4}$$

$$= 0 \qquad \text{car } \mathbf{U}_p(0) = 0, \tag{D.5}$$

$$\mathbb{V}(\mathbf{X}_p(t)) = B^2\tau_p^2 \left\{t - 2\tau_p \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right)\right] + \frac{\tau_p}{2}\left[1 - \exp\left(-2\frac{t}{\tau_p}\right)\right]\right\}, \tag{D.6}$$

$$\mathbb{V}^{\text{eq th}}(\mathbf{X}_p(t)) = B^2\tau_p^2 t. \tag{D.7}$$

De la même manière que pour les vitesses, les simulations ont été menées afin de prouver la convergence du schéma utilisé vers les statistiques théoriques de l'intégration d'un processus d'Ornstein-Uhlenbeck. Les paramètres constants des simulations sont résumés dans la Table. D.1. Les résultats qui représentent l'espérance et la variance de la vitesse sont exposés comparativement à la théorie respectivement sur les figures D.3 et D.4.

Dans le cas limite du régime balistique ($\Delta t \ll \tau_p$), les ordres de grandeurs des statistiques sur la vitesse - processus d'Ornstein-Uhlenbeck - obtenus par la simulation du schéma numérique correspondent à la théorie.

D.2 Statistiques du mouvement brownien aux temps longs

Aux temps longs, autrement dit lorsque le temps courant t est bien plus grand que le temps caractéristique physique du mouvement brownien (*i.e.* le temps de relaxation τ_p pour les particules), l'espérance $\mathbb{E}$, la variance $\mathbb{V}$ et la variance à l'équilibre thermique de la vitesse $\mathbb{V}^{\text{eq th}}$ sont connues (Tanière, 2010) pour la variable vitesse des équations de Langevin $\mathbf{U}_p(t)$, qui suit un processus stochastique d'Ornstein-Uhlenbeck :

$$\mathbb{E}(\mathbf{U}_p(t)) = 0, \tag{D.8}$$

$$\mathbb{V}(\mathbf{U}_p(t)) = \mathbb{V}^{\text{eq th}}(\mathbf{U}_p(t)) = \frac{B^2\tau_p}{2}. \tag{D.9}$$

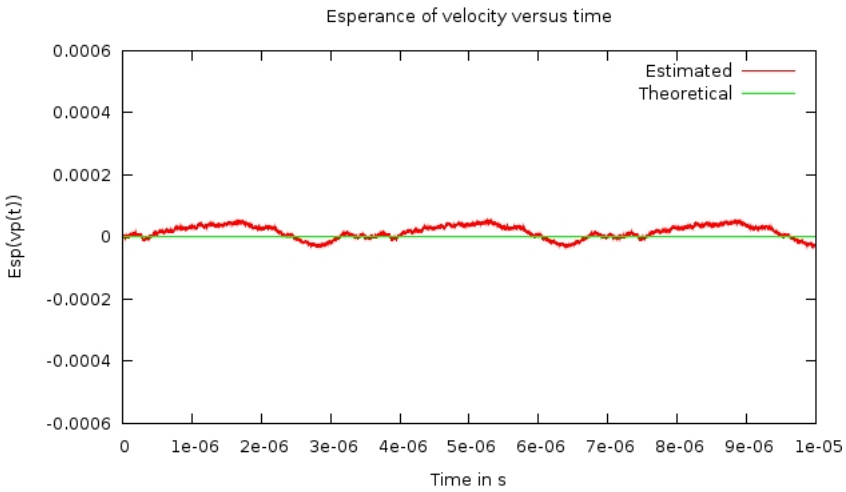


FIGURE D.1 – Comparaison des espérances théorique et simulée sur la vitesse d'une particule - temps courts.

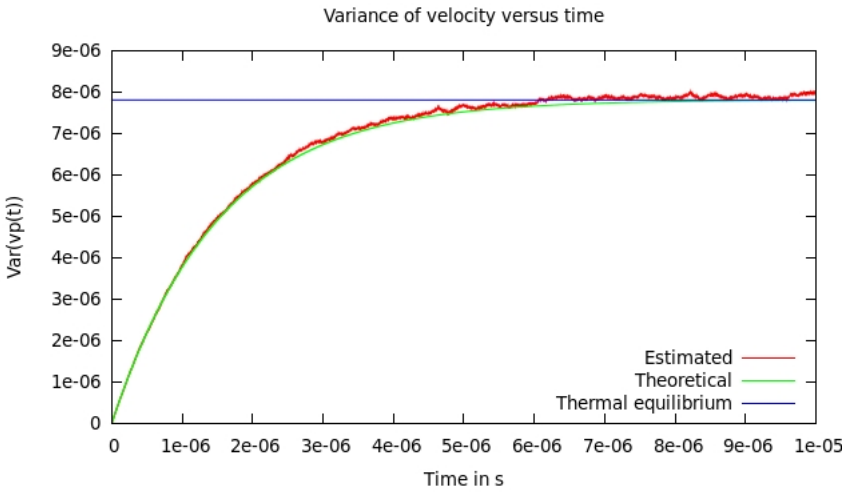


FIGURE D.2 – Comparaison des variances théorique et simulée sur la vitesse d'une particule - temps courts.

Des simulations ont été menées afin de prouver la convergence du schéma utilisé vers les statistiques théoriques du processus d'Ornstein-Uhlenbeck. Les paramètres constants des simulations sont résumés dans la Table. D.2. Les résultats qui représentent l'espérance et la variance de la vitesse sont exposés comparativement à la théorie respectivement sur les figures D.5 et D.6.

De la même manière, nous pouvons analyser le comportement de la variable position, notée $\mathbf{X}_p(t)$, aux temps longs. D'après la littérature (Tanière, 2010), nous pouvons donner les expressions de l'espérance, de la variance et la valeur à l'équilibre thermique de la position

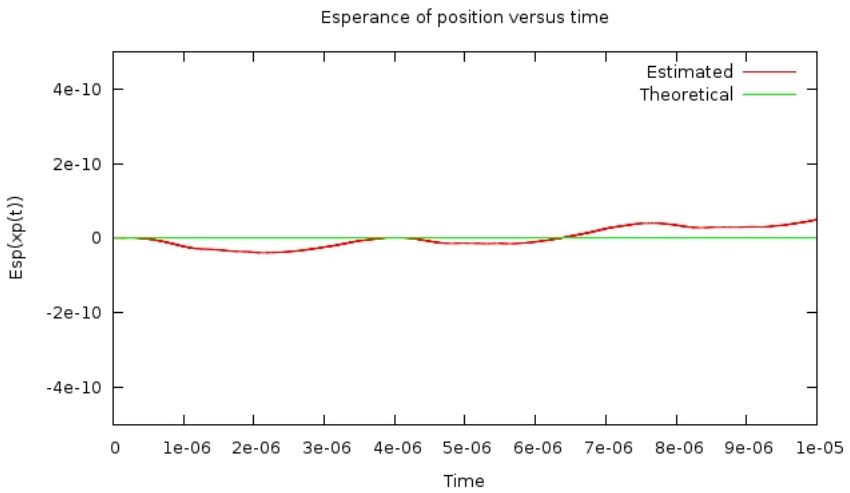


FIGURE D.3 – Comparaison des espérances théorique et simulée sur la position d'une particule - temps courts.

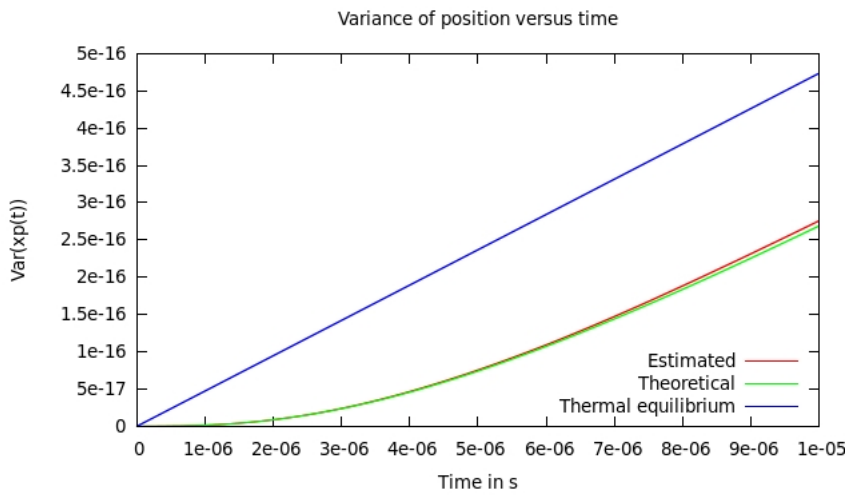


FIGURE D.4 – Comparaison des variances théorique et simulée sur la position d'une particule - temps courts.

d'une particule. En termes stochastiques, cette position est simplement l'intégrale de la vitesse (processus d'Ornstein-Uhlenbeck) dans le temps. Nous obtenons :

$$\mathbb{E}(\mathbf{X}_p(t)) = \mathbf{U}_p(0)\tau_p\left[1-\exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right)\right], \tag{D.10}$$

$$= 0 \qquad \text{car } \mathbf{U}_p(0)=0, \tag{D.11}$$

$$\mathbb{V}(\mathbf{X}_p(t)) = B^2\tau_p^2\left\{t-2\tau_p\left[1-\exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right)\right]+\frac{\tau_p}{2}\left[1-\exp\left(-2\frac{t}{\tau_p}\right)\right]\right\}, \tag{D.12}$$

$$\mathbb{V}^{\text{eq th}}(\mathbf{X}_p(t)) = B^2\tau_p^2 t. \tag{D.13}$$

TABLEAU D.2 – Paramètres utilisés dans les simulations - temps longs.

Nombre de particules	10000
$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	1000
d_p	$1\mu m$
τ_p	$3 \times 10^{-6} s$
Δt	$10^{-2} s$
t_{max}	$250 s$

De la même manière que pour les vitesses, les simulations ont été menées afin de prouver la convergence du schéma utilisé vers les statistiques théoriques de l'intégration d'un processus d'Ornstein-Uhlenbeck. Les paramètres constants des simulations sont résumés dans la Table. D.1. Les résultats qui représentent l'espérance et la variance de la vitesse sont exposés comparativement à la théorie respectivement sur les figures D.3 et D.4.

Dans le cas limite du régime diffusif ($\Delta t \gg \tau_p$), les ordres de grandeurs des statistiques sur la vitesse - processus d'Ornstein-Uhlenbeck - obtenus par la simulation du schéma numérique correspondent à la théorie.

D.3 Erreurs statistiques sur les variables simulées

La méthode de Monte-Carlo est utilisée pour la simulation du schéma numérique que nous avons choisi (Eqs. 1.16). Nous pouvons donc compléter la validation de ce schéma numérique par une estimation des erreurs statistiques en fonction du nombre de réalisations du processus aléatoire. La variation théorique de telles erreurs est bien connue dans la littérature (Minier, Peirano et Chibbaro, 2003) :

$$\epsilon_{\mathbb{E}(\mathbf{U}_p),\mathbb{V}(\mathbf{U}_p)} \sim \frac{1}{\sqrt{N}}, \tag{D.14}$$

avec N le nombre de réalisations du processus aléatoire, ici le nombre de particules.

Les erreurs statistiques estimées par plusieurs simulations à différents nombres de particules N sont données pour les temps courts sur les figures D.9 et D.10 et pour les temps longs sur figures D.11 et D.12.

La correspondance en loi de comportement de ces erreurs statistiques avec les variations de l'expression théorique conforte la validation du schéma numérique dans les simulations. Même si aux temps courts les résultats sont obtenus avec une moins bonne précision, nous pouvons conclure que les cas limites théoriques sont retrouvés, aussi bien pour le régime balistique ($\Delta t \gg \tau_p$) que diffusif ($\Delta t \ll \tau_p$).

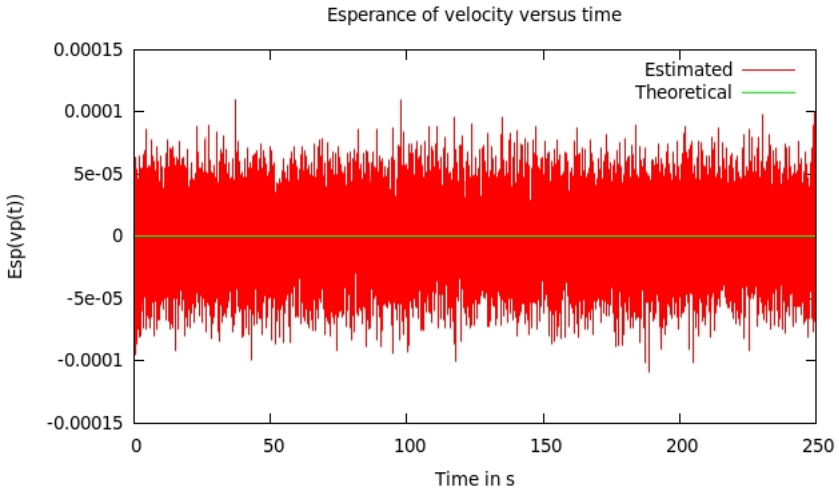


FIGURE D.5 – Comparaison des espérances théorique et simulée sur la vitesse d'une particule - temps longs.

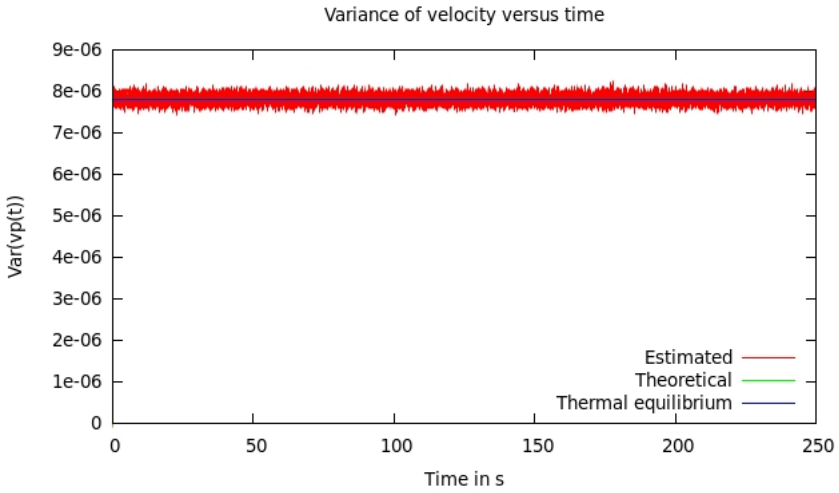


FIGURE D.6 – Comparaison des variances théorique et simulée sur la vitesse d'une particule - temps longs.

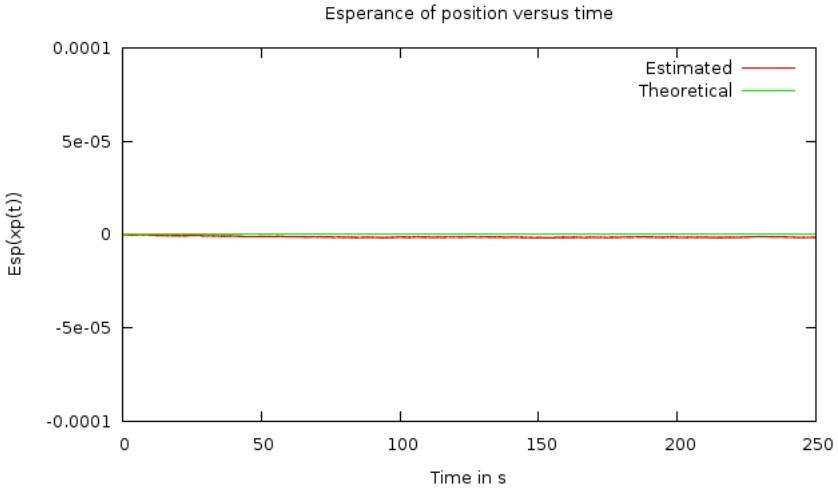


FIGURE D.7 – Comparaison des espérances théorique et simulée sur la position d'une particule - temps longs.

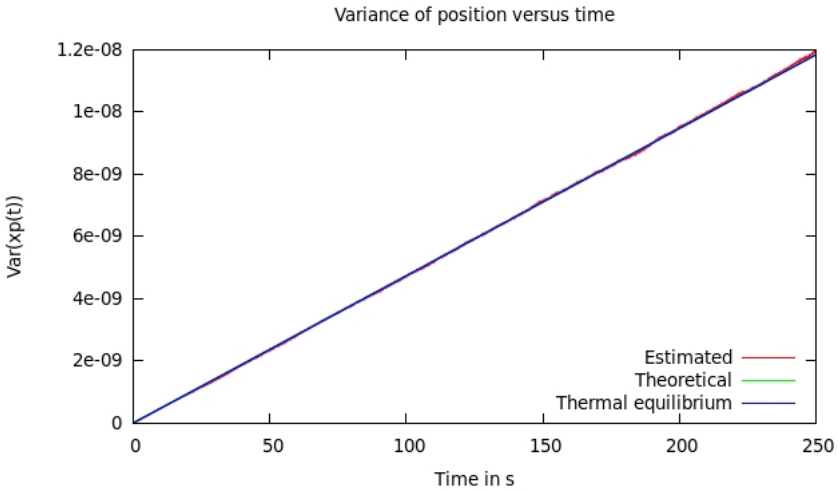


FIGURE D.8 – Comparaison des variances théorique et simulée sur la position d'une particule - temps longs.

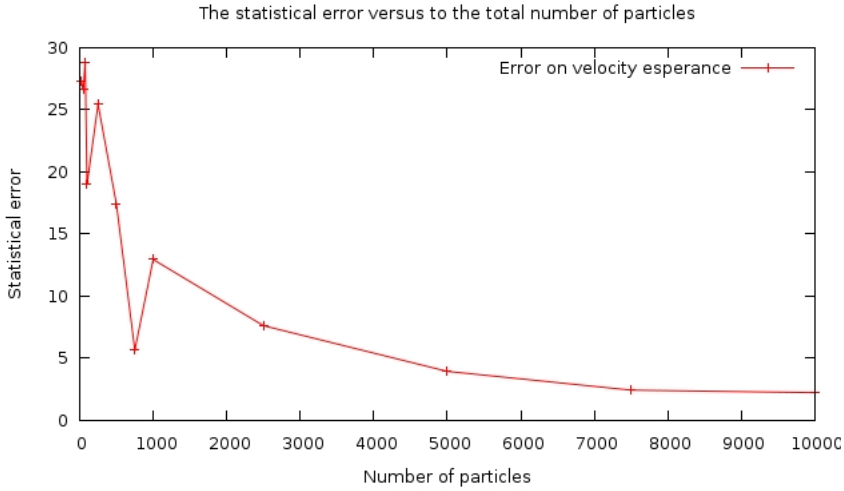


FIGURE D.9 – Erreur statistique estimée sur l'espérance de la vitesse : $|\mathbf{U}^{\text{estimée}} - \mathbf{U}^{\text{théorique}}|$ - temps courts.

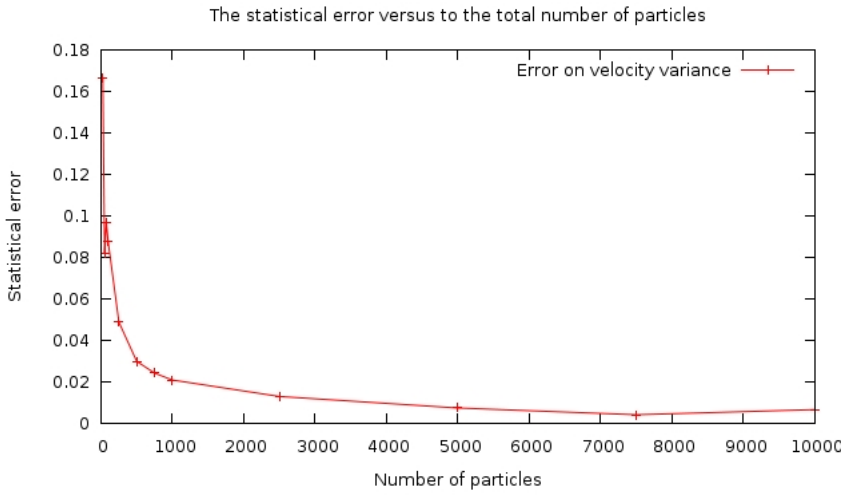


FIGURE D.10 – Erreur statistique estimée sur la variance de la vitesse : $|\mathbf{U}^{\text{estimée}} - \mathbf{U}^{\text{théorique}}|$ - temps courts.

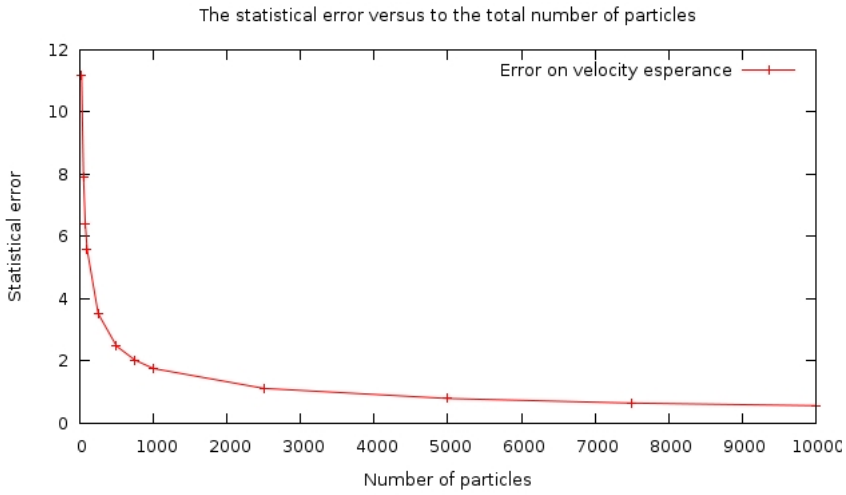


FIGURE D.11 – Erreur statistique estimée sur l'espérance de la vitesse : $|\mathbf{U}^{\text{estimée}} - \mathbf{U}^{\text{théorique}}|$ - temps longs.

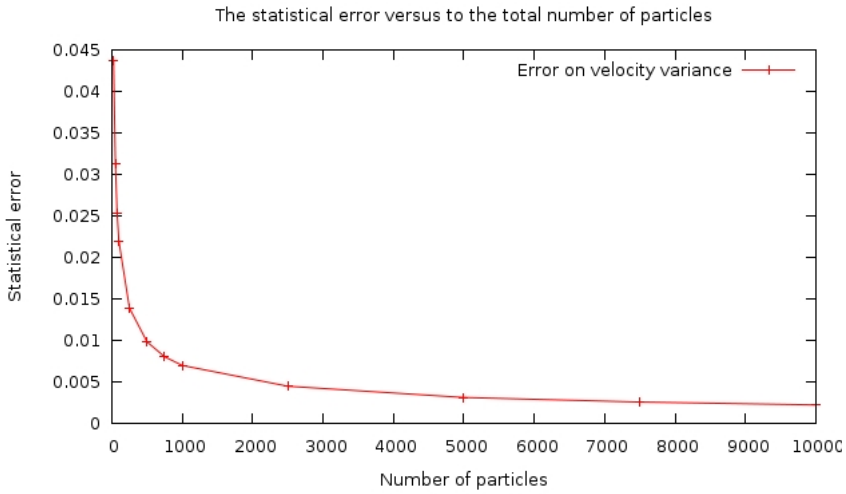


FIGURE D.12 – Erreur statistique estimée sur la variance de la vitesse : $|\mathbf{U}^{\text{estimée}} - \mathbf{U}^{\text{théorique}}|$ - temps longs.

Annexe E

Les outils mathématiques stochastiques

Pour bien comprendre les différences fondamentales entre l'intégration d'équations différentielles ordinaires (dites de Riemann-Stieltjes) et l'intégration d'équations différentielles stochastiques, certains pré-requis mathématiques sont nécessaires. Le processus de Wiener modélise une marche aléatoire et les règles de base du calcul des intégrales stochastiques selon Itô (Itô et Henry P. McKean, 1965) sont utilisées.

E.1 Le processus de Wiener

En premier lieu, il convient d'utiliser un outil mathématique qui modélise la marche aléatoire caractéristique du mouvement brownien. C'est le processus de Wiener, noté W_t, qui remplit cette fonction. De nombreuses informations sur l'utilisation du calcul stochastique appliqué aux cas physiques sont données dans la littérature (Gardiner, 1985; Borodin et Salminen, 2002). Le processus de Wiener est un processus Gaussien, il est donc entièrement défini par sa valeur moyenne et sa variance. Pour le caractériser, nous utiliserons les deux fonctions que sont M sa moyenne, et C sa covariance, qui sont respectivement des fonctions de une et deux variables telles que pour un processus stochastique X_t quelconque :

$$M(t) =< X_t >, \qquad \text{et} \qquad C(t,t') =< (X_t - < X_t >)(X_{t'} - < X_{t'} >) >, \tag{E.1}$$

qui pour le processus de Wiener valent :

$$M(t) = 0, \qquad \text{et} \qquad C(t,t') = \min(t,t'). \tag{E.2}$$

Ces définitions sont résumées dans Minier et Peirano (2001).

Bien qu'il ne soit pas dérivable, ce processus est continu en tous points. Ses incréments sur des pas de temps infinitésimaux dt, notés $dW_t = W_{t+dt} - W_t$, sont stationnaires et indépendants. Nous pouvons noter que chaque incrément est une variable Gaussienne de moyenne nulle et de moments d'ordres supérieurs donnés par :

$$< dW_t >= 0, < (dW_t)^2 >= dt, < (dW_t)^{2p+1} >= o(dt) \text{ et } < (dW_t)^{2p} >= 0, \quad \forall p > 1. \tag{E.3}$$

C'est le seul processus stochastique respectant des incréments gaussiens indépendants sur des trajectoires continues. Autre fait marquant, ces trajectoires sont de variations non bornées sur tout intervalle fini, ce qui explique que le calcul des intégrales stochastiques impose de nouvelles règles, différentes de celles dites "classiques" énoncées par Riemann-Stieltjes. Nous utiliserons les règles du calcul stochastique énoncées par Itô et Henry P. McKean (1965).

E.2 Les règles du calcul d'Itô

Afin de donner un sens au calcul d'une intégrale stochastique, il faut avant tout bien comprendre les différences de comportement entre une variable classique et une variable stochastique. Ce paragraphe n'a pas pour but d'exposer en totalité l'utilisation de la méthode d'intégration d'Itô pour le calcul d'intégrales stochastiques, mais simplement d'en motiver le choix. De plus amples informations sur les méthodes de calculs d'Itô se trouvent dans Itô et Henry P. McKean (1965), Karatzas et Shreve (1991), Gardiner (1985) et Borodin et Salminen (2002).

Pour le calcul d'une intégrale "classique", la limite définie par :

$$\int_{t_0}^{t} X(s)dW_s = \lim_{N\to+\infty} \sum_{k=0}^{N} X(\tau_k)(W_{t_{k+1}} - W_{t_k}), \tag{E.4}$$

doit être indépendante du choix de τ_k dans l'intervalle $[t_k; t_{k+1}]$ supposé suffisamment petit. Il faut donc remarquer que pour une intégrale stochastique, ceci n'est pas respecté, du fait de la proposition énoncée au paragraphe précédent : *les trajectoires d'un processus de Wiener sont de variations non bornées sur tout intervalle fini*. Ainsi, différents choix arbitraires de τ_k dans l'intervalle $[t_k; t_{k+1}]$ peuvent entraîner différents résultats. Ceci est illustré sur la figure E.1.

Pour pallier à l'erreur induite par ce traitement, Itô et Henry P. McKean (1965) proposent de choisir pour chaque intervalle k, $\tau_k = t_k$. Ceci annule les règles du calcul au sens de Riemann-Stieltjes. Les études menées par Itô permettent de donner un sens au calcul d'intégrale sur des grandeurs stochastiques et respectent les deux propriétés suivantes, où "$< \cdot >$" est l'espérance mathématique :

- la moyenne d'une fonction intégrée contre un Wiener est nulle : $\left\langle \int_{t_0}^{t_1} X(s)dW_s \right\rangle = 0$,
- l'isométrie : $\left\langle \int_{t_0}^{t_2} X(s)dW_s \int_{t_1}^{t_3} Y(s)dW_s \right\rangle = \int_{t_1}^{t_2} < X(s)Y(s) > ds$, avec X, Y deux processus stochastiques et $t_0 \leq t_1 \leq t_2 \leq t_3$.

Cette interprétation des intégrales stochastiques est discutable car d'autres approches ont été élaborées. Il existe par exemple la méthode élaborée par Stratonivich, dont une description détaillée se trouve dans Gardiner (1985). À la différence du calcul au sens d'Itô, elle consiste à choisir $[X(t_k) + X(t_{k+1})]/2$ plutôt que $X(t_k)$ comme le propose Itô. Dans ce sens, les règles du calcul d'intégrales élaborées par Riemann-Stieltjes restent valables, et donc la manipulation des intégrales est plus simple. Cependant, la propriété de moyenne nulle n'est pas respectée par le calcul au sens de Stratonivich ce qui implique un terme dans l'intégration qui peut être interprété comme un bruit.

C'est l'intégration des variables stochastiques au sens d'Itô que nous allons utiliser dans tout ce document.

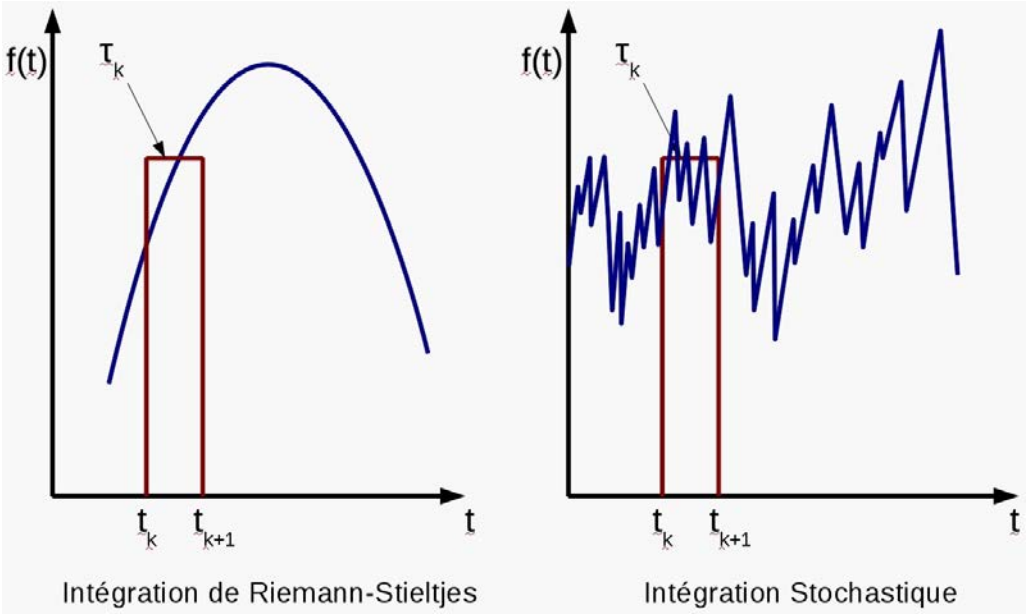


FIGURE E.1 – L'intégration d'une variable classique comparée à l'intégration d'une variable stochastique.

Annexe F

Calcul du Δt_{coll} pour les algorithmes déterministes

Ce calcul intervient une fois que la collision entre les deux particules est validée par les critères géométriques de l'algorithme de type MD. À l'instant exact de la collision, on a :

$$\mathbf{X}_{p,i}(t+\Delta t_{coll}) = \mathbf{X}_{p,i}(t) + (t+\Delta t_{coll})\mathbf{U}_{p,i}(t) \quad \text{(F.1)}$$

$$\mathbf{X}_{p,j}(t+\Delta t_{coll}) = \mathbf{X}_{p,j}(t) + (t+\Delta t_{coll})\mathbf{U}_{p,j}(t) \quad \text{(F.2)}$$

Et la condition suivante est vérifiée :

$$\|\mathbf{X}_{p,j}(t+\Delta t_{coll}) - \mathbf{X}_{p,i}(t+\Delta t_{coll})\| = r_{p,i} + r_{p,j} \quad \text{(F.3)}$$

On pose :

$$\begin{aligned} \mathbf{X}_{p,ij} &= \mathbf{X}_{p,j} - \mathbf{X}_{p,i} \\ \mathbf{U}_{p,ij} &= \mathbf{U}_{p,j} - \mathbf{U}_{p,i} \end{aligned}$$

On remplace dans (F.3) et on élève membre à membre au carré :

$$\begin{aligned} \|\mathbf{X}_{p,ij}(t) + \Delta t_{coll}\mathbf{U}_{p,ij}(t)\|^2 &= (r_{p,i}+r_{p,j})^2 \\ &\Updownarrow \\ \mathbf{U}_{p,ij}^2(t)\Delta t_{coll}^2 + 2(\mathbf{U}_{p,ij}(t)\cdot\mathbf{X}_{p,ij}(t))\Delta t_{collision} + \mathbf{X}_{p,ij}^2(t) &= (r_{p,i}+r_{p,j})^2. \end{aligned} \quad \text{(F.4)}$$

L'équation (F.4) est une équation du second degré en $\Delta t_{collision}$ qui, lorsqu'elle admet strictement deux solutions réelles positives, donne le $\Delta t_{collision}$ relatif aux deux particules : c'est alors la racine positive la plus petite des deux. Si l'une des racine est négative, cela signifie que la collision a eu lieu avant t. Dans le cas d'une unique solution réelle (si le discriminant est nul), cela signifie que les deux particules sont en contact parfait. Si l'équation n'admet pas deux solutions réelles, les particules n'entreront pas en contact au cours du pas de temps.

Annexe G

Outils mathématiques nécessaires aux calculs stochastiques

G.1 Définition d'une diffusion

Soit $(X_t, t \geq 0)$ une diffusion à valeur dans un intervalle $I \subset \mathbb{R}$. Une diffusion est complètement définie par :

- une fonction m appelée la mesure de vitesse,
- une fonction s appelée le facteur d'échelle,
- des conditions sur les bords du domaine.

Ces deux fonctions (m, s) sont connues et référencées dans Borodin et Salminen (2002) dans le cas de diffusions particulières (Brownien, Bessel, ...). D'autres grandeurs sont données pour ces processus telles que le générateur du processus $\mathcal{G}$, le domaine $\mathcal{D}$, la fonction de Green $G_\lambda(x, y)$, le Wronksien w_λ.
Il existe aussi les fonctions ψ_λ et ϕ_λ, qui sont les solutions fondamentales de l'équation : $\mathcal{G}u = \lambda u$. Elles sont linéairement indépendantes et toutes les solutions peuvent être exprimées par une combinaison linéaire de ces deux fonctions.

G.2 Vocabulaire

Soit $(X_t, t \geq 0)$ une diffusion :

- $\mathbb{P}_x(X_t \in dy)dy = q(t, x, y)$ est appelé la densité par rapport à la mesure de Lebesgue de la variable aléatoire X_t, sachant que $X_0 = x$,
- $\mathbb{P}_x(X_t \in dy) = p(t, x, y)m(dy)$. Alors, $p(t, x, y)$ est appelé la densité par rapport à la mesure de vitesse de la variable aléatoire X_t, sachant que $X_0 = x$.

G.3 Fonction de Green

Soit $(X_t, t \geq 0)$ une diffusion et $p(t, x, y)$ sa densité par rapport à la mesure de vitesse. La fonction de Green est définie par :

$$G_\lambda(x, y) = \int_0^\infty e^{-\lambda t} p(t, x, y) dt. \tag{G.1}$$

On peut également l'exprimer en fonction de w_λ, ψ_λ et ϕ_λ :

$$G_\lambda(x,y) = w_\lambda^{-1}\psi_\lambda(x)\phi_\lambda(y), \text{ si } x \leq y, \tag{G.2}$$
$$G_\lambda(x,y) = w_\lambda^{-1}\psi_\lambda(y)\phi_\lambda(x), \text{ si } y \leq x, \tag{G.3}$$

G.4 Espérance

L'espérance d'une variable aléatoire X de densité $f(t)$ est donnée par :

$$\mathbb{E}[X] = \int_{\mathbb{R}} tf(t)dt \tag{G.4}$$

Ainsi, on donne facilement $\forall\Phi$ une fonction :

$$\mathbb{E}[\Phi(X)] = \int_{\mathbb{R}} \Phi(t)f(t)dt \tag{G.5}$$

G.5 Définition du temps d'atteinte

Soit T_a le temps d'atteinte du niveau a par le processus X_t :

$$T_a = \inf\{u \geq 0, X_u = a\}. \tag{G.6}$$

On note sa densité de la manière suivante, pour un processus (X_t) partant de x pour atteindre a au temps u :

$$\mathbb{P}_x(T_a \in du) = n_{x,a}(u)du. \tag{G.7}$$

G.6 Transformée de Laplace

La transformée de Laplace d'une fonction $f(t)$ est donnée par :

$$\mathcal{L}[f(t)] = \int_0^\infty e^{-\lambda t}f(t)dt, \forall t \in \mathbb{R}_+ \tag{G.8}$$

Dans la littérature, on trouve souvent l'espérance de la transformée de Laplace d'une variable aléatoire X : $\mathbb{E}[e^{-\lambda X}]$. Si X est une variable aléatoire de densité f, alors d'après la section G.4 :

$$\mathcal{L}[f(t)](\lambda) = \mathbb{E}[e^{-\lambda X}] \tag{G.9}$$

G.7 Probabilité conditionnelle

Soit deux évenements A et B :

$$\mathbb{P}(A \cap B) = \mathbb{P}(A, B) = \mathbb{P}(A|B)\mathbb{P}(B). \tag{G.10}$$

G.8 Propriété de Markov

La probabilité que, partant de x, la diffusion soit au niveau y à l'instant t sachant qu'elle a atteint le niveau a à l'instant u est égale à la probabilité que, partant de a, elle soit au niveau y à l'instant $t-u$.

$$\mathbb{P}_x(X_t \in dy | T_a = u) = \mathbb{P}_a(X_{t-u} \in dy). \tag{G.11}$$

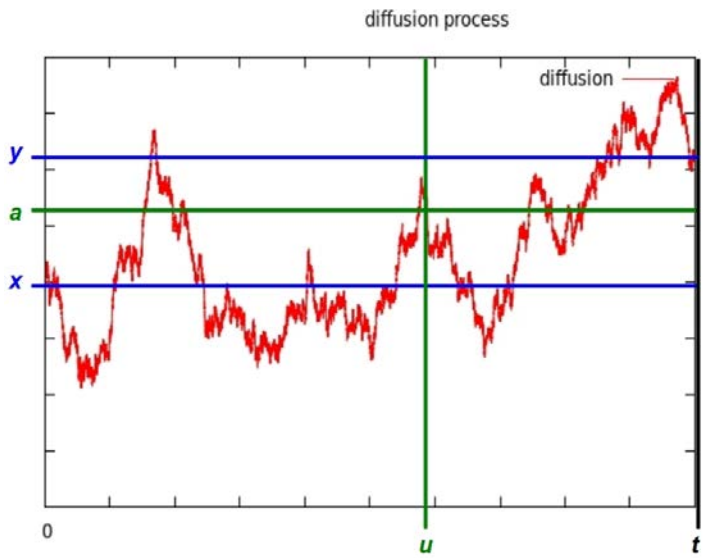


FIGURE G.1 – Illustration de la propriété de Markov.

G.9 Formule d'absolue-continuité pour les ponts

Soit un pont de longueur t pour une diffusion $(X_s, s \geq 0)$, avec $X_0 = x$ et $X_t = y$. Si on définit une variable aléatoire F_v, avec $v < t$, qui ne dépend que de la trajectoire (X_s) avant v (*par exemple* $F_v = \sup_{u \leq v} X_u$ ou $F_v = \int_0^v X_u du$), alors :

$$\mathbb{E}^{x,t,y}[F_v] = \mathbb{E}_x \left[\frac{p(t-v, X_v, y)}{p(t,x,y)} F_v \right]. \tag{G.12}$$

Annexe H

Calcul de la probabilité de collision

Ce chapitre expose les calculs stochastiques effectués par Dr. Christophe PROFETA, mathématicien spécialiste des calculs stochastiques sur les processus de diffusion, qui a grandement aidé au développement de ce travail en exprimant la valeur de la probabilité de rencontre de deux particules ayant chacune une trajectoire purement diffusive.

H.1 Cas général d'une diffusion

Soit $(X_t, t \geq 0)$ une diffusion et T_a son temps d'atteinte du niveau a : $T_a = \inf\{u \geq 0, X_u = a\}$. On cherche à calculer la probabilité suivante :

$$\mathbb{P}_x(X_t \in dy, T_a \leq t). \tag{H.1}$$

Calculons sa transformée de Laplace en utilisant Eq. G.10 :

$$\int_0^\infty e^{-\lambda t}\mathbb{P}_x(X_t \in dy, T_a \leq t)dt = \int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t \mathbb{P}_x(X_t \in dy|T_a = u)n_{x,a}(u)dudt, \tag{H.2}$$

Par la propriété de Markov Eq. G.11 :

$$\int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t \mathbb{P}_x(X_t \in dy|T_a = u)n_{x,a}(u)dudt = \int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t \mathbb{P}_a(X_{t-u} \in dy)n_{x,a}(u)dudt. \tag{H.3}$$

Ensuite, simplement par définition et en remarquant le produit de convolution :

$$\begin{aligned}\int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t \mathbb{P}_a(X_{t-u} \in dy)n_{x,a}(u)dudt &= \int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t p(t-u,a,y)m(dy)n_{x,a}(u)dudt,\\ &= \int_0^\infty e^{-\lambda t}m(dy)(p(\cdot,a,y) * n_{x,a})(t)dt. \end{aligned}\tag{H.4}$$

En remarquant :

$$\int_0^\infty e^{-\lambda t}p(t,a,y)dt = G_\lambda(a,y), \text{ par définition }, \tag{H.5}$$

$$\int_0^\infty e^{-\lambda t}n_{x,a}(t)dt = \mathbb{E}_x[e^{-\lambda T_a}], \tag{H.6}$$

et comme la transformée de Laplace d'un produit de convolution est égale au produit des transformées de Laplace, on obtient alors :

$$\begin{aligned}\int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t \mathbb{P}_a(X_{t-u}\in dy)n_{x,a}(u)dudt &= \int_0^\infty e^{-\lambda t}\int_0^t p(t-u,a,y)m(dy)n_{x,a}(u)dudt,\\ &= \int_0^\infty e^{-\lambda t}m(dy)(p(\cdot,a,y)*n_{x,a})(t)dt,\\ &= G_\lambda(a,y)\mathbb{E}_x[e^{-\lambda T_a}]m(dy). \end{aligned} \tag{H.7}$$

On introduit, d'après Borodin et Salminen (2002) - page 18, proposition 10 - :

$$\mathbb{E}_x(e^{-\lambda T_a}) = \frac{\phi_\lambda(x)}{\phi_\lambda(z)}, \text{ si } x\geq z, \tag{H.8}$$

ce qui nous donne, en utilisant Eq. G.3 :

$$\begin{aligned}\mathbb{E}_x[e^{-\lambda T_a}] &= \frac{\phi_\lambda(x)}{\phi_\lambda(a)},\\ &= \frac{\phi_\lambda(x)w_\lambda^{-1}\psi_\lambda(a)}{\phi_\lambda(a)w_\lambda^{-1}\psi_\lambda(a)},\\ &= \frac{G_\lambda(a,x)}{G_\lambda(a,a)}, \end{aligned} \tag{H.9}$$

et ainsi,

$$G_\lambda(a,y)\mathbb{E}_x[e^{-\lambda T_a}]m(dy) = G_\lambda(a,y)\frac{G_\lambda(a,x)}{G_\lambda(a,a)}m(dy). \tag{H.10}$$

Remarquons ensuite que :

$$\{T_a\leq t\} = \{\inf_{u\leq t} X_u \leq a\}. \tag{H.11}$$

Alors il vient :

$$\begin{aligned}\int_0^\infty e^{-\lambda t}\mathbb{P}_x(X_t\in dy, T_a\leq t)dt &= \int_0^\infty e^{-\lambda t}\mathbb{P}_x(\inf_{u\leq t} X_u\leq a|X_t=y)\mathbb{P}_x(X_t\in dy)dt,\\ &= \int_0^\infty e^{-\lambda t}\mathbb{P}_x(\inf_{u\leq t} X_u\leq a|X_t=y)p(t,x,y)m(dy)dt,\\ &= G_\lambda(a,y)\frac{G_\lambda(a,x)}{G_\lambda(a,a)}m(dy). \end{aligned} \tag{H.12}$$

En simplifiant la mesure de vitesse (m) membre à membre, n'étant pas dépendant de la variable d'intégration, on obtient :

$$\int_0^\infty e^{-\lambda t}\mathbb{P}_x(\inf_{u\leq t} X_u\leq a|X_t=y)p(t,x,y)dt = G_\lambda(a,y)\frac{G_\lambda(a,x)}{G_\lambda(a,a)}. \tag{H.13}$$

En notant le pont partant de x de longueur t et arrivant en y de la manière suivante : $\mathbb{P}^{x,t,y}$, on remarque que la probabilité qui nous intéresse est :

$$\mathbb{P}_x(\inf_{u\leq t} X_u\leq a|X_t=y) = \mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\leq t} X_u\leq a). \tag{H.14}$$

On arrive donc à exprimer la transformée de Laplace de cette probabilité, moyennant la densité de probabilité par rapport à la mesure de vitesse ($p(t,x,y)$) en utilisant les fonctions de Green (H.13). Toutes ces grandeurs sont connues pour bon nombre de processus diffusifs, dont le processus de Bessel de dimension 3 (ou d'ordre $1/2$).

H.2 Dans le cas du mouvement Brownien

H.2.1 Cas général : $W_t \sim \mathcal{N}(0,t)$.

Borodin et Salminen (2002) donnent :

$$G_\lambda(a,x) = \frac{1}{2\sqrt{2\lambda}} e^{-\sqrt{2\lambda}(x+a)},\ \forall x \geq a > 0, \tag{H.15}$$

$$p(t,x,y) = \frac{1}{2\sqrt{2\pi t}} \exp\left(-\frac{(x-y)^2}{2t}\right). \tag{H.16}$$

Donc, en repartant de Eq. H.13, on a :

$$G_\lambda(a,y)\frac{G_\lambda(x,a)}{G_\lambda(a,a)} = \frac{1}{2\sqrt{2\lambda}} \frac{e^{-\sqrt{2\lambda}x}}{e^{-\sqrt{2\lambda}a}} e^{-\sqrt{2\lambda}(x+a)}. \tag{H.17}$$

Ce qui donne :

$$\mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\leq t} B_u \leq a)p(t,x,y) = \frac{1}{2\sqrt{2\pi t}} e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}}, \tag{H.18}$$

et ainsi, comme

$$p(t,x,y) = \frac{1}{2\sqrt{2\pi t}} e^{-\frac{(x-y)^2}{2t}}, \tag{H.19}$$

on obtient la formule identique à celle tirée de Karatzas et Shreve (1991), soit :

$$\mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\leq t} B_u \leq a) = \exp\left(-\frac{2(a-x)(a-y)}{t}\right). \tag{H.20}$$

H.2.2 Cas particulier : $X_t \sim \mathcal{N}(0, B^2 t)$.

On remarque que :

$$X_t = BW_t. \tag{H.21}$$

Ceci nous donne simplement :

$$\begin{aligned} \mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\leq t} X_u \leq a) &= \mathbb{P}^{\frac{x}{B},t,\frac{y}{B}}\left(\inf_{u\leq t} B_u \leq \frac{a}{B}\right), \\ &= \exp\left(-\frac{2(a-x)(a-y)}{B^2 t}\right). \end{aligned} \tag{H.22}$$

H.3 Dans le cas du processus de Bessel d'ordre $1/2$ (dimension 3)

H.3.1 Cas général : $X_t = \left(\sum_{i=1}^3 W_t^2\right)^{\frac{1}{2}}$.

Borodin et Salminen (2002) donnent :

$$G_\lambda(a,x) = \frac{1}{2\sqrt{2\lambda}} \frac{1}{ax}\left(e^{\sqrt{2\lambda}a} - e^{-\sqrt{2\lambda}a}\right) e^{-\sqrt{2\lambda}x},\ \forall x \geq a > 0, \tag{H.23}$$

$$p(t,x,y) = \frac{1}{2xy\sqrt{2\pi t}}\left(\exp\left(-\frac{(x-y)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)\right). \tag{H.24}$$

En repartant de Eq. H.13, on obtient :

$$G_\lambda(a,y)\frac{G_\lambda(x,a)}{G_\lambda(a,a)} = \frac{1}{2xy\sqrt{2\lambda}}\left(\exp\left(-\sqrt{2\lambda}(x+y-2a)\right) - \exp\left(-\sqrt{2\lambda}(x+y)\right)\right). \tag{H.25}$$

On utilise la formule tirée d'une table de transformée de Laplace inverse, soit :

$$\frac{1}{\sqrt{\lambda}}e^{-\sqrt{a\lambda}} = \int_0^\infty e^{-\lambda t}\frac{1}{\sqrt{\pi t}}e^{-\frac{a}{4t}}dt, \tag{H.26}$$

pour donner enfin :

$$\begin{aligned}
\frac{1}{2xy\sqrt{2}\sqrt{\lambda}}\exp\left(-\sqrt{\lambda}\sqrt{2}(x+y-2a)\right) &= \int_0^\infty \frac{e^{-\lambda t}}{2xy\sqrt{2}\sqrt{\pi t}}\exp\left(-\frac{2(x+y-2a)^2}{4t}\right)dt,\\
\frac{1}{2xy\sqrt{2}\sqrt{\lambda}}\exp\left(-\sqrt{\lambda}\sqrt{2}(x+y)\right) &= \int_0^\infty \frac{e^{-\lambda t}}{2xy\sqrt{2}\sqrt{\pi t}}\exp\left(-\frac{2(x+y)^2}{4t}\right)dt.
\end{aligned}$$

Par injectivité de la transformée de Laplace, on obtient :

$$\mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\le t} X_u \le a)p(t,x,y) = \frac{1}{2xy\sqrt{2}\sqrt{\pi t}}\left[\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)\right]. \tag{H.27}$$

Finalement, ayant l'expression de $p(t,x,y)$ donnée à l'equation H.24, on obtient pour $0 < a \le x, y$:

$$\begin{aligned}
\mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\le t} X_u \le a) &= \frac{e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}} - e^{-\frac{(x+y)^2}{2t}}}{e^{-\frac{(x-y)^2}{2t}} - e^{-\frac{(x+y)^2}{2t}}},\\
&= \frac{e^{-\frac{2a(x+y-2a)}{t}} - 1}{e^{-\frac{2xy}{t}} - 1}.
\end{aligned} \tag{H.28}$$

On vérifie :
- si $a = 0$, la probabilité est nulle, ce qui correspond à la théorie puisqu'un processus de Bessel n'atteint jamais 0,
- si $a = x$ ou $a = y$, la probabilité vaut 1,
- $\frac{\partial}{\partial a}\left(e^{2a(x+y)-2a^2}\right) = (2(x+y)-4a)\,e^{2a(x+y)-2a^2} \ge 0$ car $x+y \ge 2a$. Il s'agit donc bien d'une fonction croissante.

H.3.2 Cas particulier : $R_t = \left(\sum_{i=1}^3 (BW_t)^2\right)^{\frac{1}{2}}$.

On remarque que :

$$\begin{aligned}
R_t &= \left(\sum_{i=1}^3 (BW_t)^2\right)^{\frac{1}{2}},\\
&= B\left(\sum_{i=1}^3 W_t^2\right)^{\frac{1}{2}},\\
&= BX_t.
\end{aligned} \tag{H.29}$$

Ceci nous donne simplement :

$$\begin{aligned}\mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u\leq t} R_u \leq a) &= \mathbb{P}^{\frac{x}{B},t,\frac{y}{B}}\left(\inf_{u\leq t} X_u \leq \frac{a}{B}\right) \\ &= \frac{e^{-\frac{2a(x+y-2a)}{B^2 t}}-1}{e^{-\frac{2xy}{B^2 t}}-1}. \end{aligned} \tag{H.30}$$

Annexe I

Calcul stochastique du temps exact de la collision

Ce chapitre expose les calculs stochastiques effectués par Dr. Christophe PROFETA, mathématicien spécialiste des calculs stochastiques sur les processus de diffusion, qui a grandement aidé au développement de ce travail en exprimant la fonction de répartition du premier temps d'atteinte d'un niveau seuil a pour un processus de Bessel 3 conditionné à atteindre ce niveau sur l'intervalle $[0;t]$. Cette fonction de répartition permet d'estimer la valeur de ce temps d'atteinte, noté T_a, utilisée dans le traitement des collisions élastiques de notre méthode de traitement des collisions stochastique (Section 5.4.1).

I.1 Notion de premier temps d'atteinte d'un niveau

Soit un processus diffusif $(X_s)_{0\leq s\leq t}$, partant de $X_0 = x$ et arrivant au temps t à $X_t = y$. On note T_a le premier temps d'atteinte du processus (X_s) au niveau a. Ci dessous, une illustration du temps d'atteinte dans le contexte physique considéré : celui de deux particules ayant un déplacement diffusif.

I.2 Densité de probabilité du premier temps d'atteinte d'un niveau donné pour un pont

I.2.1 Généralités

On cherche à calculer la densité suivante :

$$\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \in du | T_a \leq t). \qquad (u \leq t). \tag{I.1}$$

Notons que

$$\begin{aligned} \mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u | T_a \leq t) &= \frac{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u \cap T_a \leq t)}{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t)}, \\ &= \frac{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u)}{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t)} \qquad \text{car} \qquad (u \leq t). \end{aligned} \tag{I.2}$$

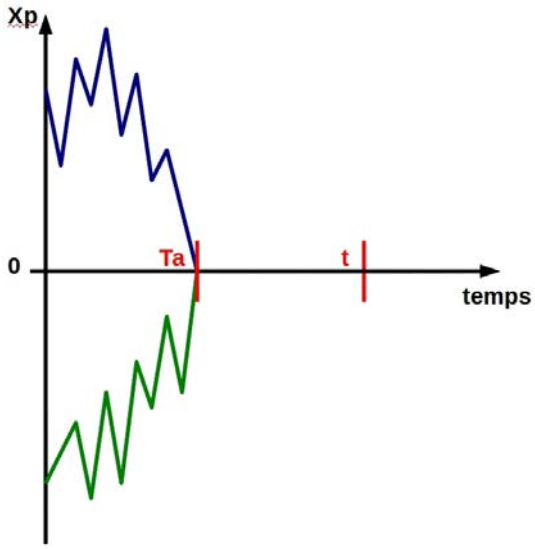


FIGURE I.1 – Illustration du temps d'atteinte d'un niveau a dans le contexte physique de 2 particules diffusives.

Remarquons ensuite l'égalité suivante concernant la fonction indicatrice notée $\mathbb{I}$:

$$\mathbb{I}_{\min(T_a,u)=Ta} = \mathbb{I}_{Ta\leq u}. \tag{I.3}$$

En effet :

- si $u < T_a$ alors $\min(T_a, u) = u \neq T_a$ donc $\mathbb{I}_{\min(T_a,u)=Ta} = \mathbb{I}_{Ta\leq u} = 0$,
- si $u \geq T_a$ alors $\min(T_a, u) = u = T_a$ donc $\mathbb{I}_{\min(T_a,u)=Ta} = \mathbb{I}_{Ta\leq u} = 1$.

Pour l'utilisation de la formule d'absolue-continuité Eq. G.12, on note que si $v = \min(T_a, u) = T_a$, alors :

$$F_v = \mathbb{I}_{\min(T_a,u)=Ta} = \mathbb{I}_{Ta\leq u}. \tag{I.4}$$

Ceci assure l'existence de F_u sur $\mathbb{R}$, sans problème de définition. Ainsi, lorsque $u \to t$ l'intégrale existe avec la définition de la fonction indicatrice que l'on a utilisé pour F_u. On utilise alors la formule d'absolue-continuité (Eq. G.12) pour les ponts (Profeta, Roynette et Yor, 2010) avec $F_v = \mathbb{I}_{Ta\leq u}$. Ceci nous donne :

$$\begin{aligned} \mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u) &= \mathbb{E}_x\left[\frac{p(t-T_a,a,y)}{p(t,x,y)}\mathbb{I}_{T_a\leq u}\right], \\ &= \frac{1}{p(t,x,y)}\int_0^u p(t-s,a,y)n_{x,a}(s)ds. \end{aligned} \tag{I.5}$$

Ainsi, à partir de l'équation I.2, on obtient :

$$\begin{aligned}
\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u | T_a \leq t) &= \frac{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u)}{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t)}, \\
&= \frac{\frac{1}{p(t,x,y)} \int_0^u p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}{\frac{1}{p(t,x,y)} \int_0^t p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}, \\
&= \frac{\int_0^u p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}{\int_0^t p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}. \qquad \text{(I.6)}
\end{aligned}$$

En dérivant l'équation I.6 par rapport à u on obtient bien la densité de T_a pour un pont de longueur t partant de x et arrivant en y :

$$\begin{aligned}
\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \in du | T_a \leq t) &= \frac{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \in du)}{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t)}, \\
&= \frac{p(t-u,a,y) n_{x,a}(u)}{\int_0^t p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}. \qquad \text{(I.7)}
\end{aligned}$$

I.2.2 Pour le Bessel 3

On connait la densité de probabilité du premier temps d'atteinte du niveau a pour un processus de Bessel 3 (X_t) partant de $X_0 = x$, donnée dans Borodin et Salminen (2002) :

$$\mathbb{P}_x(T_a \in ds) = n_{x,a}(s) ds = \frac{a(x-a)}{x\sqrt{2\pi} s^{3/2}} \exp\left(-\frac{(x-a)^2}{2s}\right) ds, \qquad (x > a). \qquad \text{(I.8)}$$

On connaît également la densité de transition par rapport à la mesure de vitesse pour le Bessel 3 (déjà utilisée dans Eq. H.24) (Borodin et Salminen, 2002) :

$$p(t,x,y) = \frac{1}{2xy\sqrt{2\pi t}} \left(\exp\left(-\frac{(x-y)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right) \right), \qquad \text{(I.9)}$$

ce qui nous permet d'évaluer directement $p(t-u,a,y)$ donné par :

$$p(t-u,a,y) = \frac{1}{2ay\sqrt{2\pi(t-u)}} \left(\exp\left(-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}\right) - \exp\left(-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}\right) \right). \qquad \text{(I.10)}$$

Remarquons la relation suivante pour un pont (déjà utilisée dans Eq. H.11) :

$$\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t) = \mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u \leq t} X_u \leq a). \qquad \text{(I.11)}$$

En effet, l'événement "le temps d'atteinte est plus petit que t", autrement dit, l'événement "$T_a \leq t$" est identique à l'événement "$\inf_{u \leq t} X_u \leq a$", en d'autres termes "le processus atteint le niveau a sur l'intervalle $[0;t]$". Ceci nous permet de donner la valeur du dénominateur pour un processus de Bessel d'ordre 3, à partir du calcul établi précédemment donné à l'équation H.27 :

$$\begin{aligned}
\int_0^t p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds &= \mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t) p(t,x,y), \\
&= \mathbb{P}^{x,t,y}(\inf_{u \leq t} X_u \leq a) p(t,x,y), \\
&= \frac{1}{2xy\sqrt{2}\sqrt{\pi t}} \left[\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right) \right] \qquad \text{(I.12)}
\end{aligned}$$

Nous connaissons donc toutes les expressions nécessaires pour évaluer la densité qui nous donne :

$$\begin{aligned}\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \in du | T_a \leq t) &= \frac{(x-a)\sqrt{t}}{\sqrt{2\pi(t-u)}u^{3/2}} \exp\left(-\frac{(x-a)^2}{2u}\right) \\ &\times \frac{\exp\left(-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}\right) - \exp\left(-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}\right)}{\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)} \mathbb{I}_{u \leq t} du. \end{aligned} \tag{I.13}$$

Dans le cas plus général d'un processus de Bessel amorti dans l'espace par le coefficient K, $\left(X_t = K\sqrt{\sum_{i=1}^3 W^2(t)}\right)$, on remplace $x \to \frac{x}{K}$, $y \to \frac{y}{K}$ et $a \to \frac{a}{K}$ pour obtenir :

$$\begin{aligned}\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \in du | T_a \leq t) &= \frac{(x-a)\sqrt{t}}{K\sqrt{2\pi(t-u)}u^{3/2}} \exp\left(-\frac{(x-a)^2}{2K^2u}\right) \\ &\times \frac{\exp\left(-\frac{(a-y)^2}{2K^2(t-u)}\right) - \exp\left(-\frac{(a+y)^2}{2K^2(t-u)}\right)}{\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2K^2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2K^2t}\right)} \mathbb{I}_{u \leq t} du. \end{aligned} \tag{I.14}$$

I.3 Fonction de répartition du premier temps d'atteinte d'un niveau donné pour un pont de Bessel 3

Il s'agit maintenant d'évaluer la fonction de répartition de cette variable aléatoire. Pour ceci, il faut intégrer la formule trouvée pour la densité. Repartons de l'expression I.6 :

$$\begin{aligned}\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u | T_a \leq t) &= \frac{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u)}{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t)}, \\ &= \frac{\int_0^u p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}{\int_0^t p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds}, \\ &= F(u). \end{aligned} \tag{I.15}$$

Si $u \leq 0$ alors $F(u) = 0$ et si $u \geq t$ alors $F(u) = 1$. Que se passe-t-il entre 0 et t ? La seule inconnue dans l'équation ci-dessus est

$$\int_0^u p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds, \tag{I.16}$$

et on note, pour simplifier les écritures :

$$f(u) = \int_0^u \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left[\exp\left(-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}\right) - \exp\left(-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}\right)\right] \exp\left(-\frac{(x-a)^2}{2u}\right) ds \qquad (u \leq t), \tag{I.17}$$

en remarquant que :

$$\int_0^u p(t-s,a,y) n_{x,a}(s) ds = \frac{(x-a)}{4\pi xy} f(u) \qquad (u \leq t). \tag{I.18}$$

On remarque que l'on peut calculer $f(t)$ explicitement à partir de la densité calculée précédemment (Eq. I.13) :

$$\begin{aligned}
\int_0^t \mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \in du | T_a \leq t) du &= 1 \qquad \text{(car c'est une densité)}, \\
&= \int_0^t \frac{(x-a)\sqrt{t}}{\sqrt{2\pi(t-u)}u^{3/2}} \exp\left(-\frac{(x-a)^2}{2u}\right) \\
&\quad \frac{\exp\left(-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}\right) - \exp\left(-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}\right)}{\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)} du, \\
&= \frac{(x-a)\sqrt{t}}{\sqrt{2\pi}\left[\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)\right]} \\
&\quad \int_0^t \frac{1}{\sqrt{(t-u)}} \frac{1}{u^{3/2}} \exp\left(-\frac{(x-a)^2}{2u}\right) \\
&\quad \left[\exp\left(-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}\right) - \exp\left(-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}\right)\right] du, \\
&= \frac{(x-a)\sqrt{t}}{\sqrt{2\pi}\left[\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)\right]} f(t), \qquad \text{(I.19)}
\end{aligned}$$

autrement dit :

$$f(t) = \frac{\sqrt{2\pi}\left[\exp\left(-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}\right) - \exp\left(-\frac{(x+y)^2}{2t}\right)\right]}{(x-a)\sqrt{t}}. \qquad \text{(I.20)}$$

D'autre part, calculons :

$$\int_0^{+\infty} \frac{\lambda}{2u^2} e^{-\frac{\lambda}{2u}} \int_0^u \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left(e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-s)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-s)}}\right) e^{-\frac{(x-a)^2}{2s}} ds \mathbb{I}_{u \leq t} du, \qquad \text{(I.21)}$$

qui devient par simplification avec les propriétés de la fonction indicatrice $\mathbb{I}_{u \leq t}$:

$$\int_0^t \frac{\lambda}{2u^2} e^{-\frac{\lambda}{2u}} \int_0^u \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left(e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-s)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-s)}}\right) e^{-\frac{(x-a)^2}{2s}} ds du. \qquad \text{(I.22)}$$

On intègre par parties :

$$\begin{aligned}
\Rightarrow \quad & \int_0^t \frac{\lambda}{2u^2} e^{-\frac{\lambda}{2u}} \int_0^u \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left(e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-s)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-s)}}\right) e^{-\frac{(x-a)^2}{2s}} ds du \\
= \quad & \left[e^{-\frac{\lambda}{2u}} f(t)\right]_0^t - \int_0^t e^{-\frac{\lambda}{2u}} \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left[e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}}\right] e^{-\frac{(x-a)^2}{2u}} du, \\
= \quad & e^{-\frac{\lambda}{2t}} f(t) - 0 - \int_0^t \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left[e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}}\right] e^{-\frac{(x-a)^2+\lambda}{2u}} du, \qquad \text{(I.23)}
\end{aligned}$$

et on remarque que l'on peut calculer l'intégrale suivante :

$$\int_0^t \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left[e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}}\right] e^{-\frac{(x-a)^2+\lambda}{2u}} du, \qquad \text{(I.24)}$$

car nous l'avons déjà fait pour le calcul de $f(t)$ à l'équation I.20 avec une translation de valeur λ. Les calculs restent donc inchangés et nous remplaçons dans l'équation I.20 les grandeurs $(x \pm a) \to \sqrt{(x \pm a)^2 + \lambda}$ et $(x \pm a)^2 \to (x \pm a)^2 + \lambda$. Ainsi :

$$\begin{aligned} \Rightarrow & \int_0^t \frac{1}{\sqrt{t-s}} \frac{1}{s^{3/2}} \left[e^{-\frac{(a-y)^2}{2(t-u)}} - e^{-\frac{(a+y)^2}{2(t-u)}} \right] e^{-\frac{(x-a)^2+\lambda}{2u}} du \\ = & \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{t}\sqrt{(x+a)^2+\lambda}} \left[e^{-\frac{(\sqrt{(x-a)^2+\lambda}+y-a)^2}{2t}} - e^{-\frac{(\sqrt{(x-a)^2+\lambda}+y+a)^2}{2t}} \right]. \end{aligned} \tag{I.25}$$

En développant les carrés dans les exponentielles :

$$\begin{aligned} \Rightarrow & \int_0^t e^{-\frac{\lambda}{2u}} \frac{\lambda}{2u^2} f(u) du \\ = & e^{-\frac{\lambda}{2t}} f(t) - \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{t}\sqrt{(x+a)^2+\lambda}} \left[e^{-\frac{(\sqrt{(x-a)^2+\lambda}+y-a)^2}{2t}} - e^{-\frac{(\sqrt{(x-a)^2+\lambda}+y+a)^2}{2t}} \right], \\ = & e^{-\frac{\lambda}{2t}} f(t) - \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{t}\sqrt{(x+a)^2+\lambda}} [e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+\lambda+(y-a)^2+2(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})} \\ & -e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+\lambda+(y+a)^2+2(y+a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})}]. \end{aligned} \tag{I.26}$$

Ensuite, par des changements de variables, on identifie le membre de gauche de l'équation ci dessus pour obtenir une transformée de Laplace. On pose alors :

$$\begin{cases} s = \dfrac{1}{u}, \\ ds = -\dfrac{du}{u^2}. \end{cases} \tag{I.27}$$

Ainsi :

$$\int_0^t e^{-\frac{\lambda}{2u}} \frac{\lambda}{2u^2} f(u) du = \int_{1/t}^{+\infty} e^{-\frac{\lambda s}{2}} \frac{\lambda}{2} f\left(\frac{1}{s}\right) ds. \tag{I.28}$$

Ensuite, on translate pour avoir l'intégrale entre 0 et $+\infty$, comme la définition d'une transformée de Laplace. On pose :

$$\begin{cases} v = s - \dfrac{1}{t}, \\ dv = ds. \end{cases} \tag{I.29}$$

Alors,

$$\begin{aligned} \int_0^t e^{-\frac{\lambda}{2u}} \frac{\lambda}{2u^2} f(u) du &= \int_{1/t}^{+\infty} e^{-\frac{\lambda s}{2}} \frac{\lambda}{2} f\left(\frac{1}{s}\right) ds, \\ &= \int_0^{+\infty} e^{-\frac{\lambda v}{2} - \frac{\lambda}{2t}} \frac{\lambda}{2} f\left(\frac{1}{v+\frac{1}{t}}\right) dv, \\ &= e^{-\frac{\lambda}{2t}} \frac{\lambda}{2} \int_0^{+\infty} e^{-\frac{\lambda v}{2}} f\left(\frac{1}{v+\frac{1}{t}}\right) dv, \end{aligned} \tag{I.30}$$

A partir de Eq. I.26 on peut alors donner :

$$\begin{aligned}
\Rightarrow \quad & e^{-\frac{\lambda}{2t}}\frac{\lambda}{2}\int_0^{+\infty} e^{-\frac{\lambda v}{2}} f\left(\frac{1}{v+\frac{1}{t}}\right) dv \\
= \quad & e^{-\frac{\lambda}{2t}} f(t) - \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{t}\sqrt{(x+a)^2+\lambda}}[e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+\lambda+(y-a)^2+2(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})} \\
& -e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+\lambda+(y+a)^2+2(y+a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})}], \\
= \quad & f(t) - \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{t}\sqrt{(x+a)^2+\lambda}}[e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+(y-a)^2+2(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})} \\
& -e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+(y+a)^2+2(y+a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})}],
\end{aligned} \tag{I.31}$$

et, avec une simplification par $e^{-\frac{\lambda}{2t}}$:

$$\begin{aligned}
\Rightarrow \quad & \frac{\lambda}{2}\int_0^{+\infty} e^{-\frac{\lambda v}{2}} f\left(\frac{1}{v+\frac{1}{t}}\right) dv \\
= \quad & f(t) - \frac{\sqrt{2\pi}}{\sqrt{t}\sqrt{(x+a)^2+\lambda}}[e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+(y-a)^2+2(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})} \\
& -e^{-\frac{1}{2t}((x-a)^2+(y+a)^2+2(y+a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda})}].
\end{aligned} \tag{I.32}$$

Ensuite, nous appliquons le nouveau changement de variable suivant :

$$\begin{cases} s = \dfrac{v}{2}, \\ ds = \dfrac{dv}{2}. \end{cases} \tag{I.33}$$

Ainsi,

$$\begin{aligned}
\Rightarrow \quad & \int_0^{+\infty} e^{-\lambda s} f\left(\frac{1}{2s+\frac{1}{t}}\right) ds \\
= \quad & \frac{f(t)}{\lambda} \\
& -\sqrt{\frac{2\pi}{t}} e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y-a)^2]}\left(\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}} e^{-\frac{(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}{t}}\right) \\
& +\sqrt{\frac{2\pi}{t}} e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y+a)^2]}\left(\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}} e^{-\frac{(y+a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}{t}}\right).
\end{aligned} \tag{I.34}$$

Nous devons alors trouver la transformé de Laplace inverse (notée $\mathcal{L}^{-1}$) du membre de droite de l'équation I.34. Très simplement, nous avons :

$$\mathcal{L}^{-1}\left[\frac{f(t)}{\lambda}\right] = f(t). \tag{I.35}$$

En effet,

$$\int_0^{+\infty} e^{-\lambda s} 1 ds = \left[-\frac{e^{-\lambda s}}{\lambda}\right]_0^{\infty} = \frac{1}{\lambda}. \tag{I.36}$$

Reste donc à calculer :

$$\mathcal{L}^{-1}\left[\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y\pm a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}{t}}\right]. \tag{I.37}$$

On retient la formule de transformation inverse de Laplace suivante :

$$\frac{1}{\sqrt{\lambda}}e^{-\sqrt{a\lambda}} = \int_0^{+\infty} e^{-\lambda s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{a}{4s}}ds. \tag{I.38}$$

On note donc que :

$$\begin{aligned}\frac{1}{\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}{t}} &= \int_0^{+\infty} e^{-(\lambda+(x-a)^2)u}\frac{1}{\sqrt{\pi u}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2u}}du,\\ &= \int_0^{+\infty} e^{-\lambda u}e^{-(x-a)^2u}\frac{1}{\sqrt{\pi u}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2u}}du.\end{aligned} \tag{I.39}$$

On intègre par partie :
- on dérive $e^{-\lambda u}$,
- on intègre $e^{-(x-a)^2u}\frac{1}{\sqrt{\pi u}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2u}}$.

Ainsi, Eq. I.39 nous donne :

$$\begin{aligned}\frac{1}{\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y-a)\sqrt{(x-a^2+\lambda}}{t}} &= \left[e^{-\lambda u}\int_0^u e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}ds\right]_0^{+\infty}\\ &\quad +\lambda\int_0^{+\infty} e^{-\lambda u}\int_0^u e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}dsdu.\end{aligned} \tag{I.40}$$

On remarque que

$$\left[e^{-\lambda u}\int_0^u e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}ds\right]_0^{+\infty} = 0. \tag{I.41}$$

En effet,
- en $u=0$, $\int_0^0 e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}ds = 0$, la fonction est définie en 0, et $e^{-\lambda 0}=1$, donc $1\times 0 = 0$.
- en $u=\infty$, $e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}ds \sim \frac{e^{-(x-a)^2s}}{\sqrt{\pi s}}ds$, qui est intégrable en $+\infty$, donc existe $\int_0^\infty e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}ds$ existe. D'autre part, $\lim_{u\to+\infty} e^{-\lambda u} = 0$. Donc nous avons : cste $\times\, 0 = 0$.

A partir de Eq. I.40 nous avons donc :

$$\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y-a)\sqrt{(x-a^2+\lambda}}{t}} = \int_0^{+\infty} e^{-\lambda u}\int_0^u e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}dsdu. \tag{I.42}$$

L'équation I.42 nous permet donc d'écrire que :

$$\mathcal{L}^{-1}\left[\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y-a)\sqrt{(x-a^2+\lambda}}{t}}\right] = \int_0^u e^{-(x-a)^2s}\frac{1}{\sqrt{\pi s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2s}}ds. \tag{I.43}$$

On cherche donc à calculer l'intégrale suivante :

$$\frac{1}{\sqrt{\pi}}\int_0^u e^{-\beta s}\frac{1}{\sqrt{s}}e^{-\frac{\alpha}{s}}ds, \tag{I.44}$$

avec

$$\begin{cases} \alpha = \dfrac{(y-a)^2}{4t^2}, \\ \beta = (x-a)^2. \end{cases} \tag{I.45}$$

Nous définissons les fonctions suivantes :

$$\begin{cases} \text{Erf}(u) = \dfrac{2}{\sqrt{\pi}}\displaystyle\int_0^u e^{-s^2}ds, \\ \text{Erfc}(u) = \dfrac{2}{\sqrt{\pi}}\displaystyle\int_u^{+\infty} e^{-s^2}ds. \end{cases} \tag{I.46}$$

Ainsi que :

$$\begin{cases} h1(u) = \dfrac{1}{\pi}\displaystyle\int_0^u e^{-\beta s}\frac{1}{\sqrt{s}}e^{-\frac{\alpha}{s}}ds, \\ h2(u) = \dfrac{1}{\sqrt{\beta}}\left[e^{-2\sqrt{\alpha\beta}}\left\{\dfrac{1}{2}+\dfrac{1}{2}\text{Erf}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}-\dfrac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)\right\} - e^{2\sqrt{\alpha\beta}}\dfrac{1}{2}\text{Erfc}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}+\dfrac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)\right]. \end{cases} \tag{I.47}$$

Nous allons montrer que $h1(u) = h2(u)$ en montrant

$$\begin{cases} h1(0) = h2(0), \\ \dfrac{\partial h1(u)}{\partial u} = \dfrac{\partial h2(u)}{\partial u}. \end{cases} \tag{I.48}$$

Il est facile de montrer que $h1(0) = h2(0) = 0$. Calculons alors les dérivées de $h1$ et $h2$. Pour rappel :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \text{Erf}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}-\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)}{\partial u} = \dfrac{1}{\sqrt{\pi}}e^{-\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}-\sqrt{\beta}\sqrt{u}\right)^2}\left(\dfrac{\sqrt{\alpha}}{u\sqrt{u}}+\dfrac{\sqrt{\beta}}{\sqrt{u}}\right), \\ \dfrac{\partial \text{Erfc}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}+\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)}{\partial u} = \dfrac{1}{\sqrt{\pi}}e^{-\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}+\sqrt{\beta}\sqrt{u}\right)^2}\left(\dfrac{\sqrt{\alpha}}{u\sqrt{u}}-\dfrac{\sqrt{\beta}}{\sqrt{u}}\right). \end{cases} \tag{I.49}$$

Ainsi, on a facilement

$$\frac{\partial h1(u)}{\partial u} = \frac{1}{\pi}e^{-\beta u}\frac{1}{\sqrt{u}}e^{-\frac{\alpha}{u}}. \tag{I.50}$$

Calculons alors $\frac{\partial h2(u)}{\partial u}$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial h2(u)}{\partial u} &= \frac{1}{\sqrt{\beta}}\left[e^{-2\sqrt{\alpha\beta}}\frac{\partial \text{Erf}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}-\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)}{\partial u} - e^{2\sqrt{\alpha\beta}}\frac{\partial \text{Erfc}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}+\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)}{\partial u}\right], \\ &= \frac{1}{\sqrt{\beta}}[e^{-2\sqrt{\alpha\beta}}\frac{1}{\sqrt{\pi}}e^{-\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}-\sqrt{\beta}\sqrt{u}\right)^2}\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{u\sqrt{u}}+\frac{\sqrt{\beta}}{\sqrt{u}}\right) \\ &\quad -e^{2\sqrt{\alpha\beta}}\frac{1}{\sqrt{\pi}}e^{-\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}+\sqrt{\beta}\sqrt{u}\right)^2}\left(\frac{\sqrt{\alpha}}{u\sqrt{u}}-\frac{\sqrt{\beta}}{\sqrt{u}}\right)], \\ &= \frac{1}{\sqrt{\pi}}e^{-\beta u}\frac{1}{\sqrt{u}}e^{-\frac{\alpha}{u}}. \end{aligned} \tag{I.51}$$

On prouve donc bien que

$$\frac{1}{\pi}\int_0^u e^{-\beta s}\frac{1}{\sqrt{s}}e^{-\frac{\alpha}{s}}ds = \frac{1}{\sqrt{\beta}}\left[e^{-2\sqrt{\alpha\beta}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\mathsf{Erf}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}-\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)\right\} - e^{2\sqrt{\alpha\beta}}\frac{1}{2}\mathsf{Erfc}\left(\sqrt{\beta}\sqrt{u}+\frac{\sqrt{\alpha}}{\sqrt{u}}\right)\right]. \tag{I.52}$$

On en déduit que

$$\begin{aligned}
&\frac{1}{\pi}\int_0^u e^{-(x-a)^2 s}\frac{1}{\sqrt{s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2 s}}ds \\
= \quad & \frac{1}{\sqrt{(x-a)^2}}[e^{-2\sqrt{\frac{(y-a)^2}{4t^2}(x-a)^2}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\mathsf{Erf}\left(\sqrt{(x-a)^2}\sqrt{u}-\frac{\sqrt{\frac{(y-a)^2}{4t^2}}}{\sqrt{u}}\right)\right\} \\
& -e^{2\sqrt{\frac{(y-a)^2}{4t^2}(x-a)^2}}\frac{1}{2}\mathsf{Erfc}\left(\sqrt{(x-a)^2}\sqrt{u}+\frac{\sqrt{\frac{(y-a)^2}{4t^2}}}{\sqrt{u}}\right)], \\
= \quad & \frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\mathsf{Erf}\left((x-a)\sqrt{u}-\frac{(y-a)}{2t\sqrt{u}}\right)\right\} \\
& -e^{\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\mathsf{Erfc}\left((x-a)\sqrt{u}+\frac{(y-a)}{2t\sqrt{u}}\right)].
\end{aligned} \tag{I.53}$$

Pour conclure,

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\pi}\int_0^u e^{-(x-a)^2 s}\frac{1}{\sqrt{s}}e^{-\frac{(y-a)^2}{4t^2 s}}ds \quad = \quad & \frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\mathsf{Erf}\left((x-a)\sqrt{u}-\frac{(y-a)}{2t\sqrt{u}}\right)\right\} \\
& -e^{\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\mathsf{Erfc}\left((x-a)\sqrt{u}+\frac{(y-a)}{2t\sqrt{u}}\right)].
\end{aligned} \tag{I.54}$$

De la même manière, on trouve que

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\pi}\int_0^u e^{-(x-a)^2 s}\frac{1}{\sqrt{s}}e^{-\frac{(y+a)^2}{4t^2 s}}ds \quad = \quad & \frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y+a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\mathsf{Erf}\left((x-a)\sqrt{u}-\frac{(y+a)}{2t\sqrt{u}}\right)\right\} \\
& -e^{\frac{(y+a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\mathsf{Erfc}\left((x-a)\sqrt{u}+\frac{(y+a)}{2t\sqrt{u}}\right)].
\end{aligned} \tag{I.55}$$

On peut ainsi, à partir de Eq. I.34, donner

$$\begin{aligned}
\Rightarrow \quad & \mathcal{L}^{-1}\left[\int_0^{+\infty} e^{-\lambda s}f\left(\frac{1}{2s+\frac{1}{t}}\right)ds\right] = f\left(\frac{1}{2u+\frac{1}{t}}\right) \\
= \quad & f(t) \\
& -\sqrt{\frac{2\pi}{t}}e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y-a)^2]}\mathcal{L}^{-1}\left[\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y-a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}{t}}\right] \\
& +\sqrt{\frac{2\pi}{t}}e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y+a)^2]}\mathcal{L}^{-1}\left[\frac{1}{\lambda\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}e^{-\frac{(y+a)\sqrt{(x-a)^2+\lambda}}{t}}\right].
\end{aligned} \tag{I.56}$$

Soit, en reprennant les étapes précitées :

$$\begin{aligned}
f\left(\frac{1}{2u+\frac{1}{t}}\right) &= f(t) \\
&- \sqrt{\frac{2\pi}{t}}e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y-a)^2]} \\
&\times\frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\text{Erf}\left((x-a)\sqrt{u}-\frac{(y-a)}{2t\sqrt{u}}\right)\right\} \\
&-e^{\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\text{Erfc}\left((x-a)\sqrt{u}+\frac{(y-a)}{2t\sqrt{u}}\right)]. \\
&+ \sqrt{\frac{2\pi}{t}}e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y+a)^2]} \\
&\times\frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y+a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\text{Erf}\left((x-a)\sqrt{u}-\frac{(y+a)}{2t\sqrt{u}}\right)\right\} \\
&-e^{\frac{(y+a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\text{Erfc}\left((x-a)\sqrt{u}+\frac{(y+a)}{2t\sqrt{u}}\right)]. \qquad \text{(I.57)}
\end{aligned}$$

On repasse cette fonction dans la variable qui nous intéresse ($\frac{1}{2u+\frac{1}{t}} \to s$) pour obtenir :

$$\begin{aligned}
f(s) &= f(t) \\
&- \sqrt{\frac{2\pi}{t}}e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y-a)^2]} \\
&\times\frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\text{Erf}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}-\frac{(y-a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}}\right)\right\} \\
&-e^{\frac{(y-a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\text{Erfc}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}+\frac{(y-a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}}\right)]. \\
&+ \sqrt{\frac{2\pi}{t}}e^{-\frac{1}{2t}[(x-a)^2+(y+a)^2]} \\
&\times\frac{1}{(x-a)}[e^{-\frac{(y+a)(x-a)}{t}}\left\{\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\text{Erf}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}-\frac{(y+a)}{2t\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}}\right)\right\} \\
&-e^{\frac{(y+a)(x-a)}{t}}\frac{1}{2}\text{Erfc}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}+\frac{(y+a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{s}-\frac{1}{t}}}\right)]. \qquad \text{(I.58)}
\end{aligned}$$

Et donc en repartant de la définition donnée à l'équation I.15

$$\begin{aligned}
F(u) &= \mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u | T_a \leq t), \\
&= \frac{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq u)}{\mathbb{P}^{x,t,y}(T_a \leq t)}, \\
&= \frac{\int_0^u p(t-s,a,y)n_{x,a}(s)ds}{\int_0^t p(t-s,a,y)n_{x,a}(s)ds}, \\
&= \frac{f(u)}{f(t)}. \qquad \text{(I.59)}
\end{aligned}$$

Après simplifications et connaissant la valeur de $f(t)$ (Eq. I.20), nous obtenons :

$$F(u) = \begin{cases} 0 & \text{si } u \leq 0, \\ \frac{1}{2}\left(1 - \frac{I_1 - I_2 - I_3 + I_4}{e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}} - e^{-\frac{(x+y)^2}{2t}}}\right) & \text{si } u \in]0, t[, \\ 1 & \text{si } u \geq t, \end{cases} \tag{I.60}$$

avec,

$$\begin{cases} I_1 = e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2t}} \text{Erf}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}} - \frac{(y-a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}}}\right), \\ I_2 = e^{-\frac{(x-y)^2}{2t}} \text{Erfc}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}} + \frac{(y-a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}}}\right), \\ I_3 = e^{-\frac{(x+y)^2}{2t}} \text{Erf}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}} - \frac{(y+a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}}}\right), \\ I_4 = e^{-\frac{(x-y-2a)^2}{2t}} \text{Erfc}\left(\frac{(x-a)}{\sqrt{2}}\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}} + \frac{(y+a)}{\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u} - \frac{1}{t}}}\right). \end{cases} \tag{I.61}$$

Pour finir, on remarque que

- lorsque $u \to 0$, $F(u) \to 0$,
- lorsque $u \to t$, $F(u) \to 1$,

ce qui correspond bien aux cas limites de la fonction de répartition de la variable aléatoire T_a sur un pont de Bessel 3 entre les instants 0 et t.

Dans le cas plus général d'un processus de Bessel amorti dans l'espace par le coefficient K, $\left(X_t = K\sqrt{\sum_{i=1}^{3} W^2(t)}\right)$, on remplace $x \to \frac{x}{K}$, $y \to \frac{y}{K}$ et $a \to \frac{a}{K}$ pour obtenir :

$$F(u) = \begin{cases} 0 & \text{si } u \leq 0, \\ \frac{1}{2}\left(1 - \frac{I_1 - I_2 - I_3 + I_4}{e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2K^2t}} - e^{-\frac{(x+y)^2}{2K^2t}}}\right) & \text{si } u \in]0, t[, \\ 1 & \text{si } u \geq t, \end{cases} \tag{I.62}$$

avec,

$$\begin{cases} I_1 = e^{-\frac{(x+y-2a)^2}{2K^2t}} \text{Erf}\left(\dfrac{(x-a)}{K\sqrt{2}}\sqrt{\dfrac{1}{u}-\dfrac{1}{t}} - \dfrac{(y-a)}{K\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u}-\frac{1}{t}}}\right), \\ I_2 = e^{-\frac{(x-y)^2}{2K^2t}} \text{Erfc}\left(\dfrac{(x-a)}{K\sqrt{2}}\sqrt{\dfrac{1}{u}-\dfrac{1}{t}} + \dfrac{(y-a)}{K\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u}-\frac{1}{t}}}\right), \\ I_3 = e^{-\frac{(x+y)^2}{2K^2t}} \text{Erf}\left(\dfrac{(x-a)}{K\sqrt{2}}\sqrt{\dfrac{1}{u}-\dfrac{1}{t}} - \dfrac{(y+a)}{K\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u}-\frac{1}{t}}}\right), \\ I_4 = e^{-\frac{(x-y-2a)^2}{2K^2t}} \text{Erfc}\left(\dfrac{(x-a)}{K\sqrt{2}}\sqrt{\dfrac{1}{u}-\dfrac{1}{t}} + \dfrac{(y+a)}{K\sqrt{2}t\sqrt{\frac{1}{u}-\frac{1}{t}}}\right). \end{cases} \tag{I.63}$$

I.4 Simulation et validation du temps d'atteinte dans notre code de calcul

Le but est de trouver la valeur du premier temps d'atteinte, noté T_a, pour chaque collision. Nous devons donc résoudre une équation du type $F(T_a) = \epsilon$ avec ϵ suivant une distribution aléatoire uniforme entre 0 et 1 ($\epsilon \sim U[0,1]$). $F(u)$ est donné par l'expression I.62 ($\forall u \in [0, \Delta t]$), et la méthode choisie pour la résolution d'une telle équation est celle dite de "dichotomie".

A partir de l'expression analytique de la distribution des premiers temps d'atteinte T_a (la densité de probabilité) pour une collision donnée, nous pouvons vérifier l'estimation que nous avons implémentée de T_a en effectuant un grand nombre de tirages aléatoires pour ϵ et en comparant la distribution des T_a obtenus pour une collision donnée avec la distribution théorique. Les figures I.2, I.3 et I.4 représentent ces deux grandeurs. Les tests ont été effectués pour différents événements "collision" pour des particules de diamètres 1μm, sur 100000 représentations aléatoires de T_a pour chaque collision. La courbe verte représente la valeur théorique et les points (rouges) représentent les résultats issues des simulations.

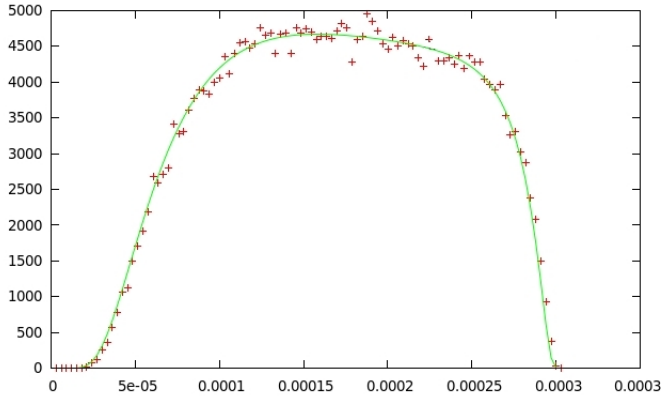


FIGURE I.2 – Distribution des temps d'atteintes pour une collision donnée (arbitrairement choisie).

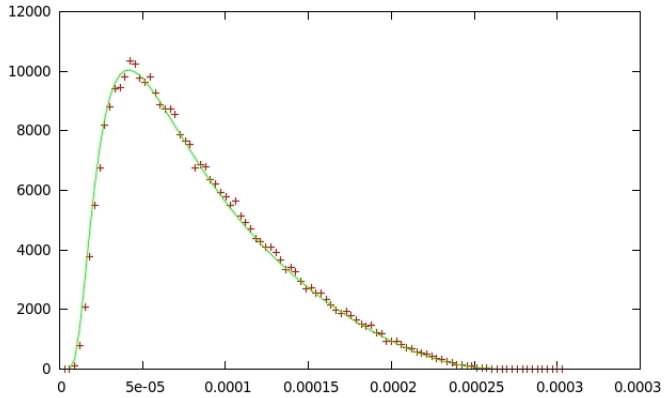


FIGURE I.3 – Distribution des temps d'atteintes pour une autre collision donnée (arbitrairement choisie).

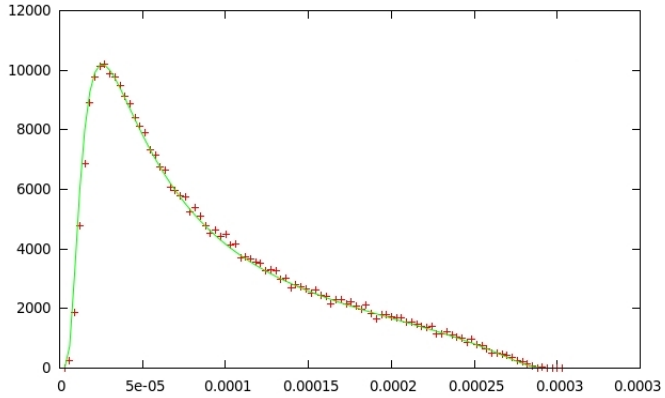


FIGURE I.4 – Distribution des temps d'atteintes pour une autre collision donnée (arbitrairement choisie).

Annexe J

Calcul stochastique sur le pont Brownien représentant le barycentre de 2 particules

Soient deux particules, notées i et j et de masses respectives $m_{p,i}$ et $m_{p,j}$ et de temps de relaxations $\tau_{p,i}$ et $\tau_{p,j}$, dont le mouvement est régi par les équations de Langevin dans un fluide au repos :

$$\begin{cases} d\mathbf{X_p}(t) = \mathbf{U_p}(t)dt, \\ d\mathbf{U_p}(t) = -\dfrac{\mathbf{U_p}(t)}{\tau_p}\, dt + (B_{\text{vit}} \cdot \mathbf{I})d\mathbf{W}_t, \end{cases} \tag{J.1}$$

Alors, comme nous l'avons montré dans la Section 1.3.2, dans le cas limite diffusif (lorsque $\Delta t \gg \tau_p$), les particules ont une trajectoire purement diffusive de la forme :

$$d\mathbf{X}_p(t) = B_{\text{pos}} d\mathbf{W}_t, \qquad \text{avec } B_{\text{pos}} = B_{\text{vit}}\tau_p. \tag{J.2}$$

Alors leur barycentre, noté $\mathbf{b}_{ij}$ suivra la loi de déplacement :

$$d\mathbf{b}_{ij}(t) = B^B_{ij} d\mathbf{W_{ij}}(t) \qquad \text{avec } (B^B_{ij})^2 = \left(\frac{m_{p,i}B_{\text{vit},i}\tau_{p,i}}{m_{p,i}+m_{p,j}}\right)^2 + \left(\frac{m_{p,j}B_{\text{vit},j}\tau_{p,j}}{m_{p,i}+m_{p,j}}\right)^2. \tag{J.3}$$

On peut facilement évaluer $\mathbf{b}_{ij}(0) = a$ et $\mathbf{b}_{ij}(\Delta t) = b$ puisqu'ils sont les barycentres des positions $\mathbf{X}_{p,i}(t)$ et $\mathbf{X}_{p,j}(t)$ aux instants $t = 0$ et $t = \Delta t$, pondérés par les masses des particules :

$$\begin{cases} \mathbf{b}_{ij}(0) = \left(\dfrac{m_{p,i}}{m_{p,i}+m_{p,j}}\right)\mathbf{X}_{p,i}(0) + \left(\dfrac{m_{p,j}}{m_{p,i}+m_{p,j}}\right)\mathbf{X}_{p,j}(0), \\ \mathbf{b}_{ij}(\Delta t) = \left(\dfrac{m_{p,i}}{m_{p,i}+m_{p,j}}\right)\mathbf{X}_{p,i}(\Delta t) + \left(\dfrac{m_{p,j}}{m_{p,i}+m_{p,j}}\right)\mathbf{X}_{p,j}(\Delta t). \end{cases} \tag{J.4}$$

En suivant les lois données pour un pont Brownien, en posant que $b_{ij}(0) = a$ et $b_{ij}(\Delta t) = b$, alors :

$$\begin{cases} \mathbb{E}\left(b_{ij}(s)|b_{ij}(0) = a, b_{ij}(\Delta t) = b\right) = a + \dfrac{(b-a)s}{\Delta t}, \\ \mathbb{V}\left(b_{ij}(s)|b_{ij}(0) = a, b_{ij}(\Delta t) = b\right) = \dfrac{s(\Delta t - s)}{\Delta t}(B^B_{ij})^2. \end{cases} \tag{J.5}$$

Ainsi, et plus simplement, on peut donner que pour chacune des directions de l'espace, considérées comme indépendantes :

$$b_{ij}(s) \sim \mathcal{N}\left(a + \frac{(b-a)s}{\Delta t}, \frac{s(\Delta t - s)}{\Delta t}(B_{ij}^B)^2\right), \tag{J.6}$$

ou encore plus directement pour ce qui nous concerne :

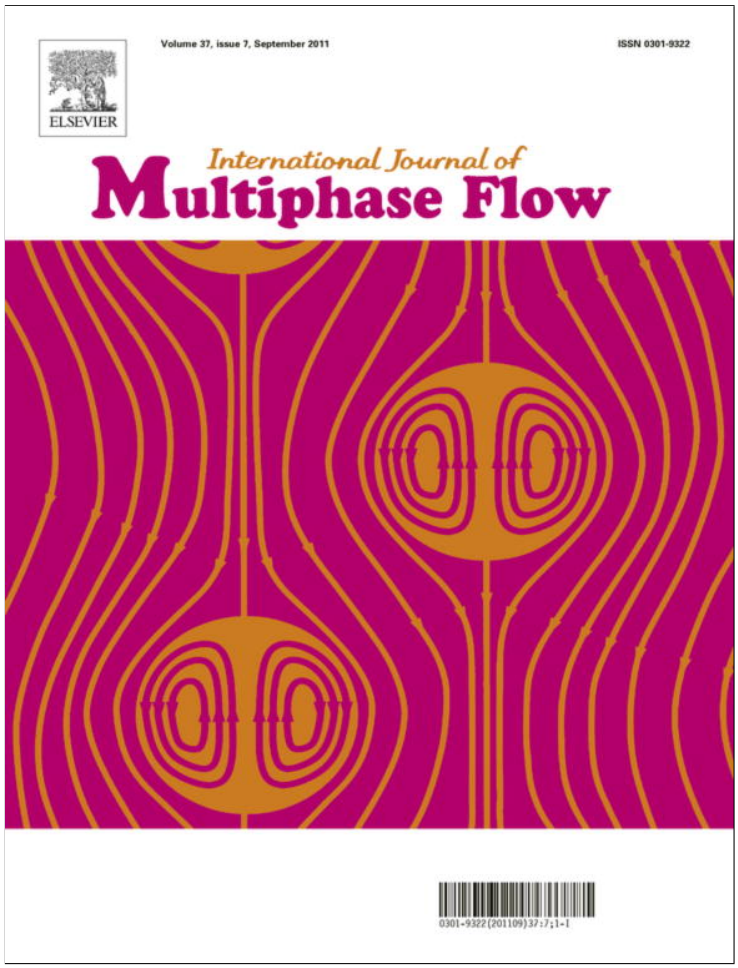
$$b_{ij}(T_a) \sim \mathcal{N}\left(a + \frac{(b-a)T_a}{\Delta t}, \frac{T_a(\Delta t - T_a)}{\Delta t}(B_{ij}^B)^2\right). \tag{J.7}$$

Ces développements permettent de positionner le barycentre de deux particules données i et j dans l'espace à tout instant compris entre 0 et Δt. Ceci est ce qu'on appelle un pont Brownien, ce qui implique la connaissance de la position du barycentre aux instants 0 et Δt (données).

Annexe K

Publication scientifique

Provided for non-commercial research and education use.
Not for reproduction, distribution or commercial use.



This article appeared in a journal published by Elsevier. The attached copy is furnished to the author for internal non-commercial research and education use, including for instruction at the authors institution and sharing with colleagues.

Other uses, including reproduction and distribution, or selling or licensing copies, or posting to personal, institutional or third party websites are prohibited.

In most cases authors are permitted to post their version of the article (e.g. in Word or Tex form) to their personal website or institutional repository. Authors requiring further information regarding Elsevier's archiving and manuscript policies are encouraged to visit:

http://www.elsevier.com/copyright

Author's personal copy

International Journal of Multiphase Flow 37 (2011) 746–755

Contents lists available at ScienceDirect

International Journal of Multiphase Flow

journal homepage: www.elsevier.com/locate/ijmulflow

A new approach for the detection of particle interactions for large-inertia and colloidal particles in a turbulent flow

M. Mohaupt [a,*], J.-P. Minier [b], A. Tanière [a]

[a] LEMTA – UMR 7563 CNRS, ESSTIN, Université Henry Poincaré – Nancy 1, 2 rue Jean Lamour, F-54529 Vandœuvre-Lès-Nancy, France
[b] Electricité de France, R&D, MFEE, 6 Quai Watier, 78400 Chatou, France

ARTICLE INFO

Article history:
Received 7 January 2011
Received in revised form 1 February 2011
Accepted 2 February 2011
Available online 3 March 2011

Keywords:
Colloids
Collision
Agglomeration
Turbulence
Stochastic process

ABSTRACT

The purpose of the paper is to present a new principle and a new algorithm for the direct numerical simulation of particle interactions within a turbulent flow. This approach has been developed in order to be able to compute agglomeration kernels with a numerical method which can still be applied at reasonable costs for very small colloidal particles. In this paper, classical algorithms are first tested and analyzed. They are shown to yield correct results but to require the use of time steps that are so small that they become intractable for colloidal particles. Their direct applications using large steps with respect to the relaxation time scale of the smallest particles reveal drastic errors that increase with the time step and with decreasing particle diameters. The new principle introduces the notion of continuous relative trajectories between possible collision partners and evaluates the exact probability for this trajectory to reach the minimum distance where two particles actually collide. Based on this new physical point of view and on the use of a probabilistic approach, a novel algorithm has been devised and numerical outcomes confirm that accurate predictions for the collision kernel are obtained independently of the particle diameter and for very large time steps. It is believed that the present ideas open interesting possibilities for the simulation of particle interactions over a whole range of particle behavior, from a ballistic to a diffusive regime, and can be extended to take into account new phenomena. Although present developments arise in the context of a numerical study, the new ideas that are introduced in this paper rely on the use of continuous stochastic bridges and, in that respect, propose a new approach to address physical issues of two-phase flow modeling.

© 2011 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Agglomeration refers to the process by which particles bind themselves and form larger particles out of local interactions among smaller particles. Also referred to as coagulation, aggregation or flocculation depending upon the authors and upon some subtle differences in the physical mechanisms at play, agglomeration occurs in a wide range of situations, from astrophysics (formation of stars and planets, for instance), meteorology (formation of clouds and fogs), hydraulics (stability of suspensions and deposition of sediments in river deltas), to physics (agglomeration of colloidal particles). The present study arises from the latter context and, in particular, from the general issue of colloidal-particle deposition. In this case, depending upon the local concentration of colloidal particles, agglomeration can take place and, if so, leads to the formation of larger particles whose inertia properties are then modified compared to the inertia of the original smaller particles. Since the rate of deposition of colloidal particles is dependent on their inertia, the effective deposition rate can be changed. Therefore, being able to predict the onset of particle agglomeration and its outcome may be an important issue to achieve correct predictions of particle deposition rates.

The physics of particle agglomeration in turbulent flows comprises typically two mechanisms. The first one corresponds to the transport of particles by the underlying flow. It is related to particle inertia and deals with how particles interact with fluid turbulence, leading to possible convective and diffusive behaviors. In this case, only hydrodynamical and mechanical processes are involved for particle transport and collision detection. The second one corresponds to the actual agglomeration, or sticking phenomena, that can take place when particles are in a local interaction. It is related to chemical properties of particles, such as their zeta potential (Israelachvili, 1991), and deals with how colloidal particles interact upon collision and whether this collision leads to the formation of an aggregate or not. In this second mechanism, only processes specific of interface science are involved. It is worth noting that these two physical mechanisms take place at different scales or, in other words, that chemical forces are important only when particles are close enough. The range of these chemical forces is typically of the

* Corresponding author.
E-mail address: mikael.mohaupt@esstin.uhp-nancy.fr (M. Mohaupt).

0301-9322/$ - see front matter © 2011 Elsevier Ltd. All rights reserved.
doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2011.02.003

Author's personal copy

order of a few nanometers and, with respect to hydrodynamical scales, this can be regarded as a local interaction. The overall agglomeration process can thus be seen as a sequence of two mechanisms: first transport and collision of particles and second, upon impact, sticking or rebound of particles. In the present context, the second mechanism is addressed by applying the well-known and classical DLVO theory which has been shown to perform accurately for the prediction of suspensions stability and is therefore well-suited (Verwey and Overbeek, 1948; Derjaguin and Landau, 1941; Israelachvili, 1991). It will not be considered in detail in the present work which concentrates on the first issue: the detection of collisions between small, or colloidal, particles carried by a turbulent flow.

When simulating agglomeration, two different approaches are possible. The first approach encompasses methods where a population balance equation is solved for a number of particle characteristic classes (Smoluchowski, 1917) and also methods where a Lagrangian particle method is used (Oesterlé and Petitjean, 1993; Sommerfeld, 2001; Ho and Sommerfeld, 2002). Obviously, these two methods correspond to different levels of description of the particle phase. However, a common aspect is that both methods require the previous knowledge of the theoretical agglomeration rate, referred to as the *agglomeration kernel*, which must be given right from the outset. These two methods simulate the overall effect of a given kernel on the particle diameter (or mass) distribution. The second possible approach corresponds to the direct simulation of particle collisions, tracking a large number of particles in the flow and detecting if they interact. In the context of fluid mechanics, this is indeed equivalent to a Direct Numerical Simulation (DNS) of particle collisions (Sundaram and Collins, 1996; Yeung and Pope, 1988). The key difference with the first approach is that the agglomeration kernel is now obtained as a result rather than being given. Using a terminology of statistical physics, one could say that the first approach is a macroscopic description whereas the second approach is a microscopic one. To simulate global effects on particle statistics, the first approach is of course a more efficient road. However, the evaluation of the relevant kernel may turn out to be a thorny issue in practical cases. Even though this question has been addressed for a long time and many expressions have been proposed in the literature (Pearson et al., 1984), agglomeration kernels have been derived mostly in some asymptotic (or theoretical) situations, such as pure Brownian motion (Smoluchowski, 1917), isotropic turbulence (Saffman and Turner, 1956; Abrahamson, 1975), pure shear flows (Adachi, 1995), and gravity cases. If we consider, for example, the situation of a near-wall turbulent flow which typically involves all the different situations at the same time (Wang et al., 1998), it is not clear whether the different available kernels have to be added or replaced by another version. For this reason and in order to provide insights into the evaluation of agglomeration kernels so as to improve macroscopic models, we have chosen in the present work to perform a DNS approach of particle collision which will be supplemented by a similar DNS approach for the fluid flow.

In this DNS point of view, the key issue is to devise an accurate detection algorithm. This problem has been addressed for a long time, particularly in molecular studies, and a large literature exists on the subject with many collision algorithms derived from molecular dynamics (Sigurgeirsson et al., 2001) or based on a geometrical detection (Chen et al., 1998; Wunsch, 2009). Yet, all these algorithms consider a ballistic-displacement regime during one time step (denoted by Δt) where particles are assumed to move in straight lines during a complete time step. In the case of particles transported by a turbulent flow, this could be translated into physical scales by considering the particle relaxation time scale, written as τ_p, which is a measure of particle inertia and represents the particle characteristic time to adjust to a fluid velocity change. Then, the ballistic assumption corresponds to having a time step such that $\Delta t \ll \tau_p$ for every particle tracked in the flow. This limitation may be still acceptable when one is dealing with particles whose diameters are large enough (typically, $d_p \geqslant 5$–$10\ \mu$m). However, in the case of colloidal particles having a range of diameters down to $d_p \simeq 0.1\ \mu$m, the ballistic regime criterion becomes too stringent. For example, if we consider colloidal particles with a diameter of about $0.1\ \mu$m and a density ratio $\rho_p/\rho_f = 1000$, then at room temperature in air we have that $\tau_p \sim 10^{-8}$ s. Thus, applying an algorithm for particle detection based on the ballistic assumption (*i.e.* $\Delta t \ll \tau_p$) would increase severely the total numerical cost by decreasing the time step (Wunsch, 2009).

With respect to this limit, one question appears: is it possible to develop a new direct method for the detection of particle collision that could be applied in the ballistic regime ($\Delta t \ll \tau_p$) as well as in the diffusive regime ($\Delta t \gg \tau_p$)? The aim of the present paper is to put forward new ideas and to develop a corresponding algorithm in order to treat particle flows where the observation time Δt can be much greater than the smaller particle characteristic time scale τ_p.

This paper is organized as follows: In the first part, the particle equations of motion and their numerical integration are presented in the absence of collision to discuss the ballistic and diffusive regimes before assessing how classical treatments of collisions perform in the diffusive limit. In the second part, a new method is introduced based on the theory of diffusive bridges and is applied to the case of detecting particle collisions. This novel approach is developed in a numerical algorithm and is validated in the case of Brownian motion.

2. Background on particle transport and classical particle collision detection

2.1. Single-particle equations and numerical integration

In this first part, we describe the particle equations of motion which are used to model particle transport in a turbulent flow and their numerical integration. Even though collisions are not considered directly, this allows to discuss ballistic and diffusive regimes and to introduce the notion of a single approach that remains valid in these two asymptotic limits.

As put forward in the Introduction, we are considering small or colloidal particles carried by a turbulent flow whose velocity field is known exactly through the use of a DNS. Since we are interested in tracking as precisely as possible a set of particles which have a range of diameters (a polydispersed particle flow), a Lagrangian point of view which allows to treat without approximation convective and the polydispersed effects is adopted. In that case, the appropriate state vector for each particle is $\mathbf{Z}_p(t) = \{\mathbf{x}_p(t), \mathbf{U}_p(t)\}$, where $\mathbf{x}_p(t)$ is the particle instantaneous location within the flow and $\mathbf{U}_p(t)$ its velocity. Colloidal particles are sensitive to Brownian effects and the equations of motion that are retained correspond to the Langevin equations (Minier and Peirano, 2001):

$$\begin{cases} d\mathbf{x}_p(t) = \mathbf{U}_p(t)dt, \\ d\mathbf{U}_p(t) = \frac{\mathbf{U}_s(t)-\mathbf{U}_p(t)}{\tau_p}\,dt + B\,d\mathbf{W}(t), \end{cases} \tag{1}$$

where τ_p is the particle relaxation time scale and $\mathbf{U}_s(t)$ the fluid velocity seen by the colloidal particle. The last part of the particle momentum equation represents Brownian effects, with dW the increment of the Wiener process (Minier and Peirano, 2001) (characterized by $dW(t) \sim \mathcal{N}(0, dt)$) and with B the diffusion coefficient. The particle relaxation time scale is given by the usual expression:

$$\tau_p = \frac{\rho_p}{\rho_f}\frac{4d_p}{3C_D|\mathbf{U}_r|}, \tag{2}$$

Author's personal copy

with C_D, the drag coefficient, a non-linear function of the particle-based Reynolds number $Re_p = d_p|\mathbf{U}_r|/\nu_f$ and $\mathbf{U}_r(t) = \mathbf{U}_p(t) - \mathbf{U}_s(t)$ the instantaneous relative velocity between dispersed and continuous phases. In the Stokes regime ($Re_p \ll 1$) which is often valid for small particles, the relaxation time has the value:

$$\tau_p = \frac{\rho_p}{\rho_f}\frac{d_p^2}{18\nu_f}. \tag{3}$$

The diffusive coefficient B is obtained by considering that, in a fluid at rest, colloidal particles reach thermal equilibrium which yields that (Minier and Peirano, 2001):

$$B^2 = \frac{2k_B\theta}{m_p\tau_p}, \tag{4}$$

where θ is the temperature, k_B is the Boltzmann constant and m_p the particle mass. Finally, in the above Langevin equations, the velocity of the fluid seen is a known quantity since the fluid velocity field is fully resolved and is given by $\mathbf{U}_s(t) = U_f^{DNS}(\mathbf{x}_p(t), t)$ (it will thus be written as $\mathbf{U}_s^{DNS}(t)$) which explains why the fluid velocity does not enter the particle state vector.

For the sake of the present discussion, it is best to address the physical issues of the ballistic and diffusive regimes directly with discrete expressions. By using the numerical approach based on the use of exponential integration and the idea of discretising the integrated form rather than the SDEs (Stochastic Differential Equation), as detailed elsewhere in comprehensive reviews (Minier et al., 2003; Peirano et al., 2006), the numerical scheme for the state vector attached to a single-particle is expressed as:

$$\begin{cases} \mathbf{x}_p(t+\Delta t) = \mathbf{x}_p(t) + \mathbf{U}_p(t)\tau_p\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right) + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)\left[\Delta t - \tau_p\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)\right] \\ \quad + B\tau_p\sqrt{\Delta t - 2\tau_p\frac{\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}{\left(1+e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}}\zeta_x + B\tau_p^2\frac{\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)^2}{\sqrt{2\tau_p\left(1-e^{-2\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}}\zeta_v, \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_p(t)e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}} + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)\left(1-e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right) + B\sqrt{\frac{\tau_p}{2}\left(1-e^{-2\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}\zeta_v, \end{cases} \tag{5}$$

where the ζ_x and ζ_v represent independent random variables sampled in a normal distribution $\mathcal{N}(0,1)$. When the particle time scale varies and is frozen at the beginning of the time step and when the externally-provided fluid velocity is also taken at time t, then these expressions correspond to a first-order numerical scheme in the weak sense (Peirano et al., 2006). On the other hand, when the particle time scale τ_p is constant in time for each particle and when $\mathbf{U}_s$ is also constant, then Eq. (5) correspond to an exact numerical scheme. It may be worth recalling that, in our context, convergence is assessed in a weak sense and that an exact scheme means that the probability laws (say the infinite range of moments) are exactly retrieved. The interest of the above numerical scheme is that it is unconditionally stable and, even more importantly for the present purpose, that a single numerical approach contains the ballistic and diffusive regimes.

Indeed, when we first consider the limit of very small time steps with respect to the particle relaxation time scale, $\Delta t \ll \tau_p$, a Taylor-expansion shows that to first order in time, we have

$$\begin{cases} \mathbf{x}_p(t+\Delta t) = \mathbf{x}_p(t) + \mathbf{U}_p(t)\Delta t + o(\Delta t), \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_p(t) + \frac{\Delta t}{\tau_p}\left(\mathbf{U}_s^{DNS}(t) - \mathbf{U}_p(t)\right) + B\sqrt{\Delta t}\zeta_v + o(\Delta t), \end{cases} \tag{6}$$

which shows that the so-called *ballistic regime* is retrieved. During one time step, particles are indeed moving in straight lines and the corresponding value for the short-time diffusion law is obtained since, for particles starting at location $\mathbf{x}_p(0)$ at time $t = 0$ with initial random velocities $\mathbf{U}_p(0)$, we have:

$$\left\langle \mathbf{x}_p^2(\Delta t)\right\rangle = \mathbf{x}_p(0)^2 + \left\langle \mathbf{U}_p(0)^2\right\rangle \Delta t^2, \tag{7}$$

which, in continuous time t (provided the assumption $t \ll \tau_p$ remains valid), is translated into

$$\left\langle \mathbf{x}_p^2(t)\right\rangle = \mathbf{x}_p(0)^2 + \langle \mathbf{U}_p(0)^2\rangle t^2. \tag{8}$$

With the same numerical scheme, the other asymptotic limit corresponding to a time step being very large compared to the particle relaxation time scale is also exactly retrieved. Indeed, by taking $\Delta t \gg \tau_p$ in Eq. (5), we have that

$$\begin{cases} \mathbf{x}_p(t+\Delta t) \simeq \mathbf{x}_p(t) + \mathbf{U}_s^{DNS}(t)\Delta t + B\tau_p\sqrt{\Delta t}\zeta_x, \\ \mathbf{U}_p(t+\Delta t) = \mathbf{U}_s^{DNS}(t) + B\sqrt{\frac{\tau_p}{2}}\zeta_v, \end{cases} \tag{9}$$

which shows that the so-called *diffusive regime* is retrieved. During one time step, particle motion is now governed mostly by the Wiener process representing the random effect of molecular collisions and the long-time diffusion law is obtained naturally since, for the same case of particles starting at location $\mathbf{x}_p(0)$ at time $t = 0$, we have

$$\left\langle \mathbf{x}_p^2(\Delta t)\right\rangle = \mathbf{x}_p(0)^2 + (B\tau_p)^2\Delta t, \tag{10}$$

which, in continuous time t (provided the assumption $t \gg \tau_p$ is valid), is translated into

$$\left\langle \mathbf{x}_p^2(t)\right\rangle = \mathbf{x}_p(0)^2 + (B\tau_p)^2 t. \tag{11}$$

In the diffusive regime, it is seen that the numerical scheme reproduces the fact that, when they are sampled at observation times (Δt) larger than their time scale, particles velocities are represented by the sum of the fluid velocity and a succession of independent Gaussian components accounting for the cumulative Brownian effects. It is also quite possible to devise modified schemes along the same principles so as to have naturally the identity of particle and fluid velocity at the end of the time step (Peirano et al., 2006) but this does not change the physical context underlined here. In terms of a SDE written in a continuous time, this limit of $\Delta t \gg \tau_p$ corresponds to writing a purely diffusive behavior for the particles (Peirano et al., 2006).

$$d\mathbf{x}_p(t) = \mathbf{U}_s^{DNS}dt + B\tau_p d\mathbf{W}(t). \tag{12}$$

The point worth emphasizing in this Section is that by using a numerical scheme, such as Eq. (5), it is quite possible to obtain the correct physical behavior regardless of whether the observation time scale (which is translated into the numerical time step Δt) is smaller or larger than the particle relaxation time scale. A single scheme will naturally adjust itself and be able to reproduce both the ballistic regime for particles having a large relaxation time scale ($\tau_p \gg \Delta t$) and the diffusive regime for particles having a small relaxation time scale ($\tau_p \ll \Delta t$). The small additional computational cost of the chosen numerical scheme is offset by the fact that for a whole range of particle diameters and, thus, of particle relaxation time scales, the numerical time step does not have to be chosen much smaller than the smallest possible value of τ_p.

The question addressed in the present work is whether similar results could be obtained for the issue of the detection of particle collision. For this purpose, we first consider classical algorithms and assess how they perform both in the ballistic as well as in the diffusive regime.

Author's personal copy

2.2. Ballistic treatment of particle–particle interactions

The previous particle equations of motion which describe how colloidal particles interact with a turbulent flow are now supplemented with a collision detection algorithm. As a first step, we choose a molecular-dynamic based algorithm, described in detail in (Sigurgeirsson et al., 2001), which appears as an accurate treatment for the agglomeration process of colloidal particles. This algorithm is based on a geometrical detection and is also referred to as "time-driven collision algorithm" since it adapts the numerical time step to bring simulations to the closest state of a collision event. Indeed, it calculates the smallest time step to bring two collision partners in an exact contact position, therefore defining the collision time step (Sigurgeirsson et al., 2001).

The numerical implementation of this classical algorithm is first validated by considering the kinetic theory of gases, where molecules move in a vacuum with constant velocity and change direction upon collision with another molecule. Between collisions, particles (meaning here molecules) are following straight lines and we are thus in a pure ballistic regime. This case is easily retrieved from the particle general equations of motion, Eq. (5), by taking $B = 0$ and $\tau_p \to \infty$ with, of course, $\mathbf{U}_s^{DNS} = 0$. The theoretical collision kernel, K_{th}, is provided by the kinetic theory of gases and is as follows (Reif, 1965):

$$K_{th}(t) = \frac{n}{L^3}\pi d_p^2\sqrt{\frac{16k_B\theta}{\pi m_p}}\frac{n}{2}, \tag{13}$$

where n is the number of particles and L^3 the computational domain. From the theoretical collision rate, the theoretical number of collision $N_c^{th}(t)$ for a monodispersed particle set is easily derived as:

$$N_c^{th}(t) = \frac{K_{th}n(n-1)}{2L^3}t. \tag{14}$$

In the numerical simulations, we start with particles uniformly distributed in the domain and with a Maxwellian distribution for their velocities. Then, from the calculated number of collisions, $N_c(t)$, encountered in the computations, we can estimate a value of the kernel by inverting Eq. (14) to get

$$K_e(t) = \frac{2N_c(t)L^3}{n(n-1)t}. \tag{15}$$

As a validation test, it is then checked whether the ratio K_e/K_{th} is close to one. Computations have been carried out with several molecules, corresponding to several particle diameters still in accordance with the hard-sphere modeling, and it is seen from Fig. 1 that very good results are obtained.

Having validated the numerical implementation, it is now worth assessing how such a classical collision detection algorithm performs in the case of small colloidal particles in a turbulent flow. For this purpose, we consider the case of pure Brownian motion, thus in a fluid at rest $\mathbf{U}_s^{DNS} = 0$. This situation has been studied for a long time and it is know that, for a monodispersed set of solid particles, the collision kernel is (Smoluchowski, 1917):

$$K_S = \frac{8k_B\theta}{3\mu_f}. \tag{16}$$

The parameters used in the computations are listed in Table 1, while the particle diameters which have been tested are detailed in Table 2. This expression is valid for the continuum regime which corresponds to the continuum assumption expressed by $Kn \leqslant 1$, where Kn is the Knudsen number.

Calculations have been performed for these three particle diameters, with a reference time step small enough to respect the criteria that $\Delta t \ll \tau_p$ (as indicated in Table 1), and the results presented

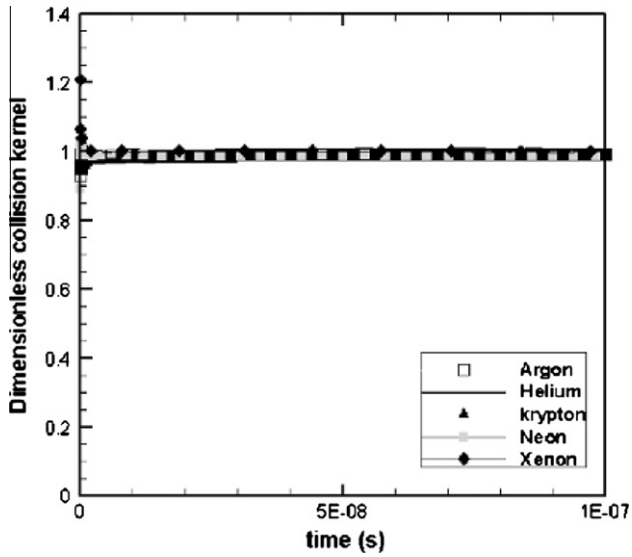


Fig. 1. Dimensionless collision kernel in the perfect ballistic case of the kinetic gases theory.

in Fig. 2 show that the dimensionless collision kernel K_e/K_{th} remains close to one for each particle diameter. Actually, these satisfactory results were expected since, as explained and described in Section 2.1, enforcing the criteria $\Delta t \ll \tau_p$ for each particle amounts to simulating a ballistic regime which is in line with the assumptions used in the development of the present collision detection algorithm.

However, the consequence of applying such an algorithm is to induce a drastic increase of the total computational cost when smaller particle diameters are considered since the particle relaxation time scale, τ_p, decreases as d_p^2. As an example, the total numerical cost (in days of computation) is presented in Fig. 3.

From this figure, it is seen that an significant raise in the total computational cost is implied by the collision algorithm, particularly for small diameters. Yet, a typical range of diameters for colloidal particles is [0.1 μm; 2 μm] and it is often essential to deal precisely with the beginning of the agglomeration process due to the smallest particle sizes. Consequently, the use of a ballistic algorithm would result in very high computational costs.

Faced with this limitation, a first possibility could be to try to use the same algorithm regardless of the criteria on the time step and thus in a limit where we would have $\Delta t \gg \tau_p$, at least for the smallest particle diameters. In order to assess the impact of the time step criteria, numerical tests have been performed and the outcomes presented in Fig. 4 show that very poor and unsatisfactory results are now obtained.

From the example with 1 μm and 0.15 μm particles, it is seen that the direct application of the time-driven algorithm in a diffusive regime leads to blatant errors and, more importantly, that these errors increase rapidly as larger time steps are used, demonstrating a clear sensitivity to the time step (even if the specifics of the algorithm makes it less sensitive to the particle diameter) that renders the algorithm inapplicable in this diffusive regime.

The discrepancies observed in Fig. 4, and in particular the fact that the collision kernel is overestimated, may be thought to be related to the specifics of one algorithm (for example, the use of a collision kernel in the case of the time-driven algorithm). Therefore, in order to separate the physical argument from the details of one particular algorithm, similar tests have been carried out with another ballistic type of algorithm. For that purpose, we have selected an algorithm which detects particle collision based on the test of a geometrical overlap between two particles, which will be

Author's personal copy

Table 1
Constant parameters used in computations.

Variable	ϕ	L (m)	$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	N_c^{th}	$\frac{\Delta t}{\tau_p}$	θ (K)	μ_f (Pa s)	k_B (SI)
Value	10^{-4}	10^{-4}	1000	500	$\frac{1}{10}$	296.15	1.83245×10^{-5}	$1.3806503 \times 10^{-23}$

Table 2
Diameters and specific properties tested in case of pure Brownian motion.

Diameter (μm)	τ_p (μs)	Kn
0.75	1.70	0.1795
1	3.03	0.1346
2	12.1	6.73×10^{-2}

referred to as the "overlap algorithm". Results obtained with such an overlap algorithm are presented in Fig. 5 for two different particle diameters and several time steps, corresponding to several ratios of $\Delta t/\tau_p$. In that case, the specifics of the overlap algorithm induce an underestimation of the collision kernel when large time steps are used. The prediction corresponding to the case of $d_p = 1$ μm, $\Delta t/\tau_p = 100$ seems surprisingly close to the theoretical level but this happens to be due to a very particular choice of the parameters. Indeed, in the diffusive regime, the typical estimation of the distance traveled by a particle within a time step is given by the probabilistic laws of diffusion (say the standard deviation of the particle displacement distribution), $\Delta x_p \sim B\tau_p\sqrt{\Delta t}$ and, with the present values of the parameters used and for a diameter of 1 μm, this typical displacement remains a small fraction of the particle diameter (say $\Delta x_p/d_p \simeq 0.1$) for which it is known that the algorithm yields good outcomes (Wunsch, 2009). Yet, simply changing the values of the parameters or using another particle diameter (see the value obtained with $d_p = 0.15$ μm), gives predictions that clearly underestimate the correct kernel. The simulated values of the collision kernel appear as rapidly decreasing when the time step is increased and, furthermore, are highly dependent upon particle diameters. More than the precise values of the errors produced, the important issue is that a large fraction of the number of collisions is missed and, therefore, that a key physical aspect is mishandled.

To conclude this part, using existing collision detection algorithms appears as quite satisfactory as long as the ballistic criteria, which is translated into $\Delta t \ll \tau_p$, is verified. In the context of DNS studies, this may be applicable for particle diameters equal or larger than $1\mu m$ but it becomes too costly for colloidal particles ($d_p < 1$ μm). For this particle range, a new approach is necessary and we propose a new point of view: instead of reducing the time step so as to adjust the simulation to the assumption of the collision detection algorithm (which considers a ballistic regime, or a straight-line displacement, of particles within a time step), can we reverse the situation and develop a new algorithm that will adapt itself to the diffusive nature of particle displacements when large time steps are used? In the following section, new ideas are put forward to address this challenging question.

3. A new stochastic approach for the detection of particle–particle interactions

3.1. Notions on diffusive bridges

As already mentioned above, the basis of classical collision detection algorithm is to assume that particles follow a ballistic regime in a time step and, thus, that the trajectory is a straight line which is fully determined by the knowledge of the starting point $\mathbf{x}_p(t)$ and the end point $\mathbf{x}_p(t+\Delta t)$, once a numerical scheme has been chosen for the integration of the particle equation of motion. The important element is that reasoning for the detection of a possible collision can be developed using only two sets of points: the positions of possible collision partners at the beginning and at the end of one time step. This is illustrated in Fig. 6a where it is seen that, in a simplified one-dimensional setting for the sake of the present discussion, when particle positions are reversed between the beginning and the end of one time step, then necessarily a collision must have occurred within this time step.

However, when we consider particles following a diffusive regime, under the influence of random terms, then a new physical picture emerges. As illustrated qualitatively in Fig. 6b, the knowledge of the two starting and end points of possible collision partners does not allow us to determine with certainty whether a collision actually occurred within the time step or not. With the same positions at the beginning and at the end of a time step, two colloidal (or diffusive) particles may have drifted away during the time step and, therefore, may have avoided to collide. The important element in this new picture is that we are now compelled to develop a reasoning based not only on the starting and end points but on the whole trajectories followed by two particles within a time step. Even in a numerical and discrete setting, this amounts to introducing a new trajectory-based approach which considers the complete continuous particle trajectories in a time step. Given that we are dealing with particles following a diffusive regime (or diffusive particles), these trajectories are referred to as *diffusive bridges*.

3.2. Application on inter-particle collision detection

To develop previous notions into quantitative arguments, we first consider the case of colloidal particles following Brownian motion in fluid at rest (*i.e.* $\mathbf{U}_s^{DNS}(t) = 0$) which corresponds to a pure diffusive regime where particle positions become a diffusion process and are the solutions of:

$$d\mathbf{x}_p(t) \approx B\tau_p\, d\mathbf{W}(t). \tag{17}$$

For a specific pair of particles labeled i and j in the following, we introduce their relative state vector defined as $\mathbf{Z}_{p,ij}(t) = \mathbf{Z}_{p,j}(t) - \mathbf{Z}_{p,i}(t)$ which yields that:

$$\begin{cases} \mathbf{x}_{p,ij}(t) = \mathbf{x}_{p,j}(t) - \mathbf{x}_{p,i}(t), \\ \mathbf{U}_{p,ij}(t) = \mathbf{U}_{p,j}(t) - \mathbf{U}_{p,i}(t). \end{cases} \tag{18}$$

Since, from Eq. (17), each particle is driven by independent Wiener process, then the relative position $\mathbf{x}_{p,ij}$ is also a diffusion process written as follows, where W' is another independent Wiener process, based on a property which states that a linear combination of independent Gaussian random variables is still a Gaussian variable:

$$d\mathbf{x}_{p,ij}(t) = K_{ij}\, d\mathbf{W}'(t), \quad \text{where} \quad K_{ij}^2 = (B_j\tau_{p,j})^2 + (B_i\tau_{p,i})^2. \tag{19}$$

At this stage, the question of whether the two Wiener processes can still be regarded as being independent upon collision raises an interesting issue related to the physical meaning behind these terms. In effect, if we were truly dealing with points (or particles with a zero diameter) moving in a fluid flow, then the two random forces should be identical when the two points are identical. However, with respect to this issue, it is worth distinguishing the case

Author's personal copy

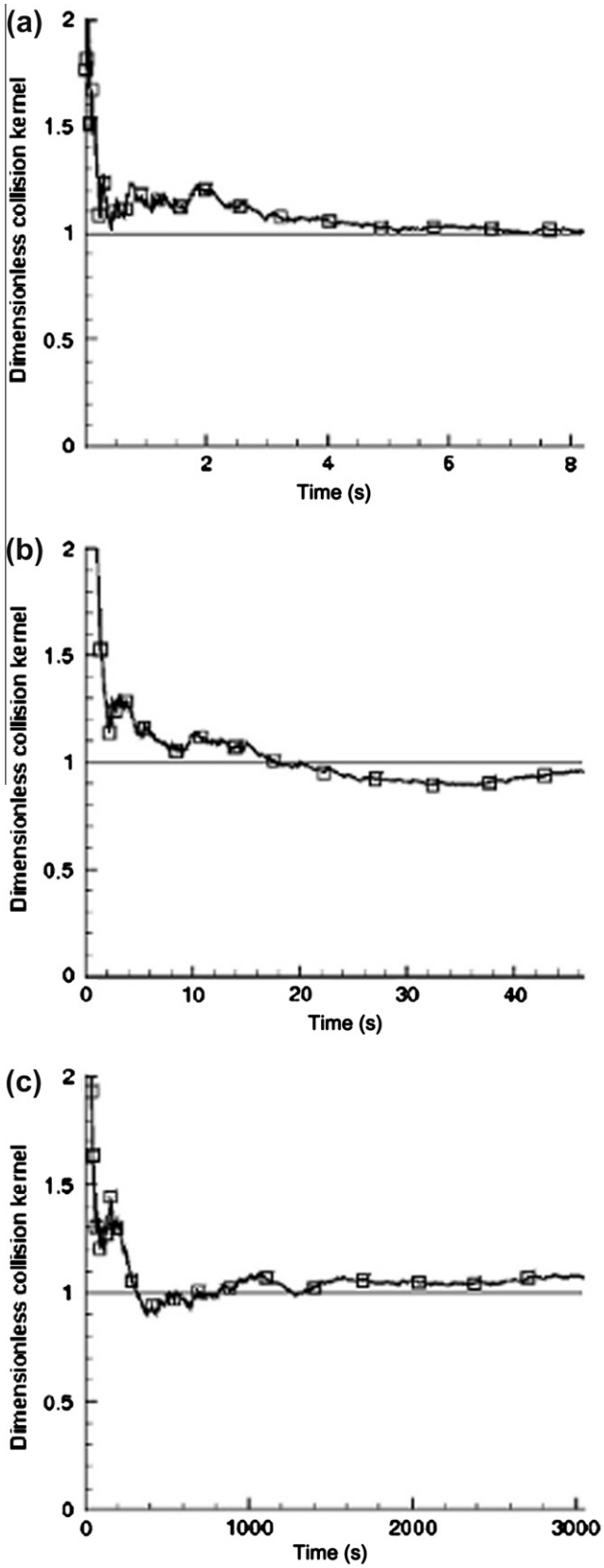


Fig. 2. Dimensionless collision kernel for a diffusive regime simulated with the time-driven (ballistic-based) algorithm respecting the criteria that $\Delta t \ll \tau_p$ for 0.75 μm-diameter (a), 1 μm-diameter (b) and 2 μm-diameter (c) monodispersed particles.

of true Brownian particles and the case of particles influenced by turbulence fluctuations represented by random effects. Indeed,

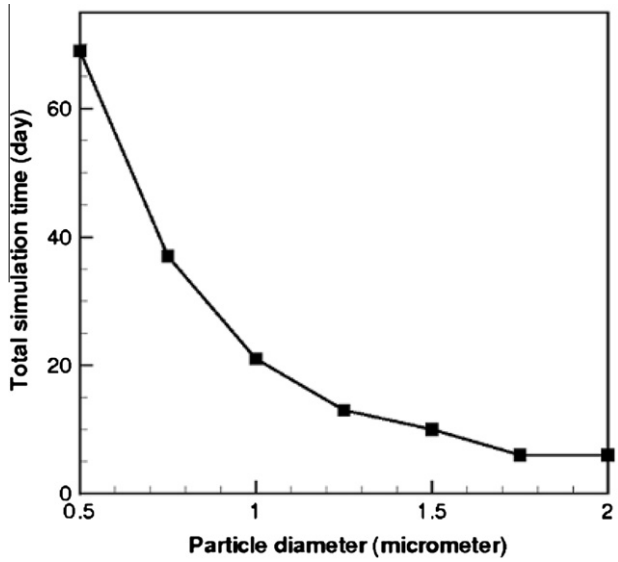


Fig. 3. Total numerical time (in day) versus particle diameter at constant volumic fraction to reach 500 collisions for the time-driven (ballistic-based) algorithm – tests on Intel Xeon 2.33 GHz.

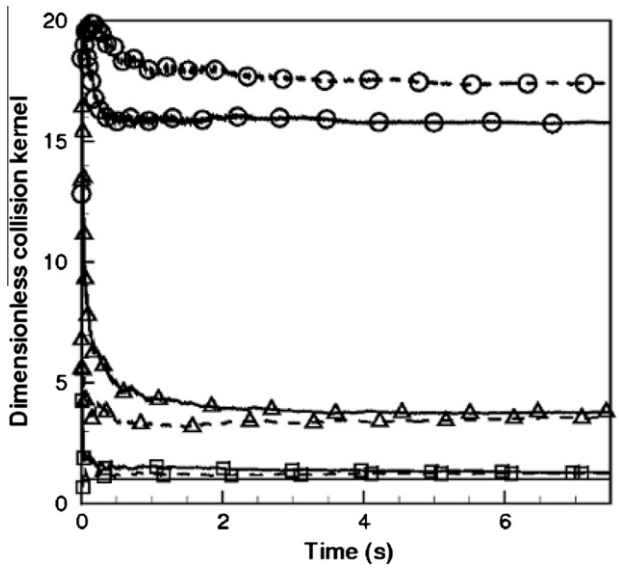


Fig. 4. Dimensionless kernel ratio for the time-driven (ballistic-based) algorithm for a diffusive regime over a time step (i.e. $\Delta t \gg \tau_p$), at several time ratio $\left(\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{10(\square), 100(\triangle), 1000(\bigcirc)\}\right)$ for 0.15 μm (dashed line) and 1 μm (solid line) particle diameters.

when particles are about to collide, they are not exactly at the very same point but, for instance, their center-of-mass remain separated by the sum of the two radius. True Brownian particles (which means particles for which the thermal effects can be replaced by white-noise terms) are particles small enough to be sensitive to thermal effects. Yet, they are also large enough with respect to the size of the fluid molecules and such that an observation time scale, which is very small with regard to the particle characteristic time scale (which depends directly on its diameter, as indicated in Eq. (2)), is still much larger than the time scale of molecular collisions. Thus, even when Brownian particles are in contact, it can assumed that the fluid molecular collisions (which act on the two particles) induce random forces which remain independent. On the other hand, if we were dealing with particles moving in a fluid

Author's personal copy

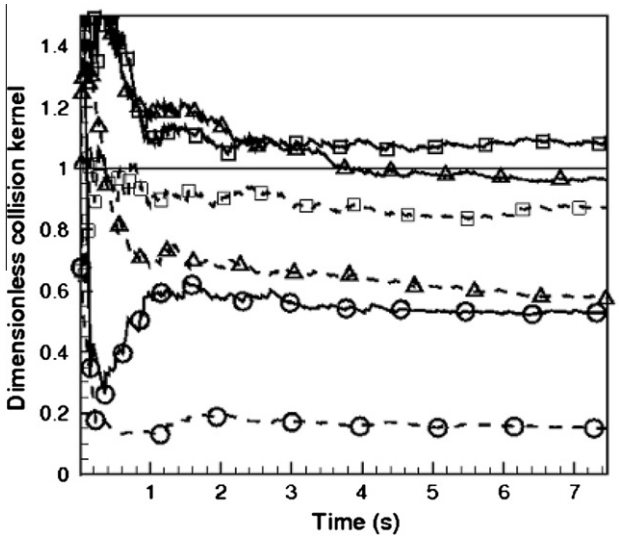


Fig. 5. Dimensionless kernel ratio for the overlapping (ballistic-based) algorithm for a diffusive regime over a time step (i.e. $\Delta t \gg \tau_p$), at several time ratio $\left(\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{10(\square), 100(\triangle), 1000(\bigcirc)\}\right)$ for 0.15 μm (dashed line) and 1 μm (solid line) particle diameters.

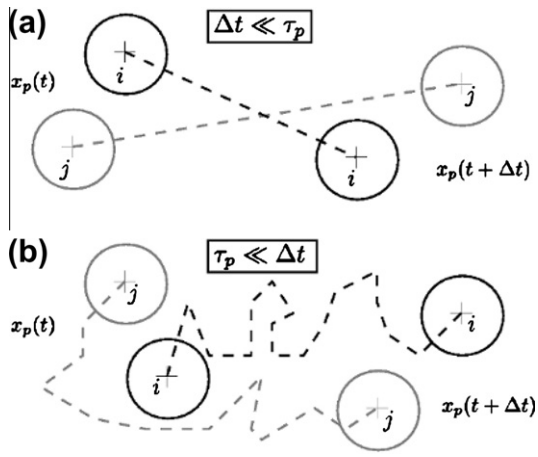


Fig. 6. Ballistic (a) and diffusive (b) behavior for a pair of particles over a time step Δt.

flow not calculated with a fine-enough space resolution (DNS) but where the effects of small-scale turbulent fluctuations are replaced by similar random terms, then the issue of whether the two random terms remain independent when particles are in contact would be quite relevant. In that case, the two random terms cannot be independent any more (actually, they should become identical upon collisions). However, this issue refers to the choice of the stochastic model retained to describe the evolution of particles in the flow. To come up with a more precise description of particles within a flow, whose turbulent effects are modeled by stochastic equations such as Langevin equations, it would then be necessary to use not a one-particle PDF model but two-particle PDF ones (Minier and Peirano, 2001).

In the present work, the actual purpose is to develop a new methodology which, in principle, can be used for various stochastic models (even if the calculation of the threshold probabilities would differ from one model to the another one). Then, the choice of considering Brownian motion is an example but one which, as explained above, still appears as an accurate approximation for the present study. A schematic representation of the relative movement of two particles between times t and $t + \Delta t$ is given in Fig. 7. From a physical point of view, a collision occurs if the relative distance, $\|\mathbf{x}_{p,ij}(t)\|$, becomes smaller than the sum of the two particle radii, say $r_{ij} = r_i + r_j$ during the whole time step.

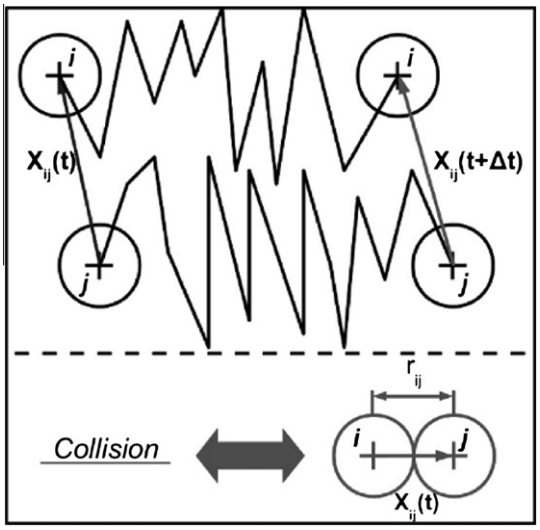


Fig. 7. Relative positions of two particles and illustration of the collision criterion.

This physical issue can now be translated into a mathematical formulation, which is illustrated in Fig. 8. We are following a scalar stochastic process (the particle relative distance) and we are interested in evaluating the probability that, starting from a value a at the beginning of the time step and ending at a value b at the end of this time step, this process reaches a specific minimum threshold (which corresponds of course to r_{ij}) during the whole time step. In other words, what is the probability that a diffusive bridge reaches a given minimum value?

With respect to this question, there exists classical mathematical work (Borodin and Salminen, 2002) which provides useful results on such bridges. The simplest example concerns a one-dimensional Brownian motion, which in our case would correspond to taking $X_t = K_{ij}W_t$. The probability that X_t reaches a level r_{ij} during a time step Δt, conditioned on the knowledge of the starting point $X_t = a$ and of the arrival point $X_{t+\Delta t} = b$ is given by:

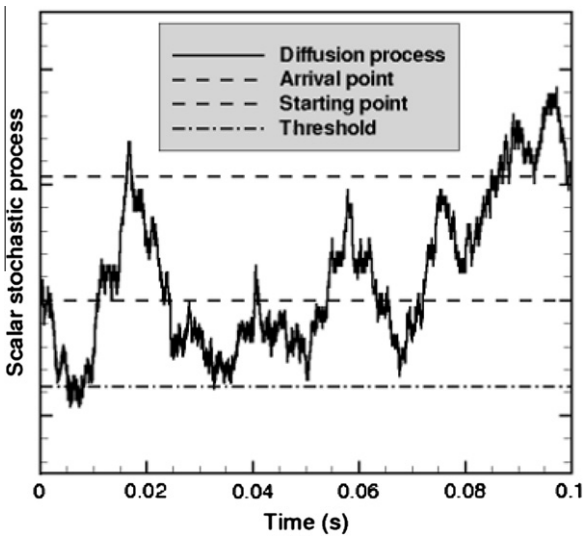


Fig. 8. Representation of a path of the relative motion between two colloidal particle over a time step.

Author's personal copy

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(X_s) \leqslant r_{ij}/X_t = a, X_{t+\Delta t} = b\right) = \exp\left[-\frac{2(r_{ij}-a)(r_{ij}-b)}{K_{ij}^2\Delta t}\right]. \tag{20}$$

As an example of a useful application, this result has already been used for the formulation of boundary conditions in a PDF model for near-wall modeling (Drebben and Pope, 1988). In that case, the problem was to evaluate the probability that a diffusive particle may have hit a solid wall (thus following one coordinate, representating the distance to a fixed wall) during one time step or, in our present formulation, to detect a possible collision between a single-particle and a fixed boundary. In the above expression, it is also important to note it is valid only in the case where $0 < r_{ij} \leqslant a,b$. Otherwise (*i.e.* if $r_{ij} > a,b$), this probability becomes equal to one, which means that the general expression is:

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(X_s) \leqslant r_{ij}/X_t = a, X_{t+\Delta t} = b\right) = \min\left(1; \exp\left[-\frac{2(r_{ij}-a)(r_{ij}-b)}{K_{ij}^2\Delta t}\right]\right). \tag{21}$$

The situation when $r_{ij} > a,b$ is the simple expression of a classical overlap of the two particles as being detected either at the beginning or at the end of the time step and the fact that the probability is equal to one translates the certainty of the collision event. Therefore, the above expression tends naturally to the ballistic treatment of collision by overlap.

If we consider now the realistic case of a three-dimensional motion for the relative displacement of two particles, the same ideas about diffusive bridges apply but the physical criteria about the relative distance $\|\mathbf{x}_{p,ij}(t)\|$ implies to handle the norm of three independent Wiener processes

$$R_t = \left(\sum_{l=1}^{3}\left(K_{ij}^l W_t^l\right)^2\right)^{\frac{1}{2}}. \tag{22}$$

In mathematical terms, this one-dimensional scalar stochastic process is called a Bessel process (Borodin and Salminen, 2002). The relations which can be found in (Borodin and Salminen, 2002) allow the evaluation of the probability for a Bessel process R_t to reach a minimum level r_{ij} over a time step Δt, conditioned on the knowledge of its values at time t and time $t + \Delta t$, and is given as follows:

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(R_s) \leqslant r_{ij}/R_t = a, R_{t+\Delta t} = b\right) = \frac{\exp\left(\frac{2r_{ij}(a+b-r_{ij})}{K_{ij}^2\Delta t}\right) - 1}{\exp\left(\frac{2ab}{K_{ij}^2\Delta t}\right) - 1}. \tag{23}$$

As for the case of a one-dimensional Brownian motion, this formula is valid when $0 < r_{ij} \leqslant a,b$ and a probability of one is, of course, obtained when there is a certain overlap at the beginning or at the end of the time step. For the sake of simplicity, in the rest of the paper we will refer to this probability as $\mathscr{P}_a^b(r_{ij})$:

$$\mathscr{P}_a^b(r_{ij}) = \frac{\exp\left(\frac{2r_{ij}(a+b-r_{ij})}{K_{ij}^2\Delta t}\right) - 1}{\exp\left(\frac{2ab}{K_{ij}^2\Delta t}\right) - 1}. \tag{24}$$

and the complete formula can thus be written as:

$$\mathbb{P}\left(\min_{t<s<t+\Delta t}(R_s) \leqslant r_{ij}/R_t = a, R_{t+\Delta t} = b\right) = \min\left(1; P_a^b(r_{ij})\right). \tag{25}$$

Having an expression for the probability of a collision along a diffusive bridge provides some physical insight into the behavior of the overlap algorithm and the results presented in Fig. 5. Indeed, by running a computation with the same values of the parameters and for the case of a particle diameter of $d_p = 1$ μm and with $\Delta t/\tau_p = 1000$, it is found that the average value of the probability to have a collision within the time step (excluding collisions detected with the end points) is $\mathscr{P}_a^b(r_{ij}) \simeq 0.45$. This results explains the underestimation observed in Fig. 5 where the fraction of the number of collisions detected by the algorithm over the theoretical number was about 0.55. The probabilistic estimation based on the diffusive bridges reveal that, for this case, 55% of the collisions occur due to the random relative motion of the two particles and that disregarding the true nature of the trajectories followed by the particles is the underlying reason behind the underestimation of the overlap algorithm.

4. Application to the case of a 3D pure Brownian motion

4.1. Details of the algorithm used

The details of the algorithm used to detect particle collisions based on the present approach are sketched in Fig. 9. The detection of particle collision is applied after particles have been moved in a time step, as described in Section 2.1. Then, for each possible collision partner, an overlapping test is carried out with the positions at the beginning and at the end of the time step. Once this overlapping test is passed, the probability $\mathscr{P}_a^b(r_{ij})$ is evaluated for the bridge corresponding to the relative motion between starting and end points over the time step, as developed in Section 3.2. The probabilities are sorted out by decreasing order to be sure to treat the most probable collision at first for each particle. Then, for one

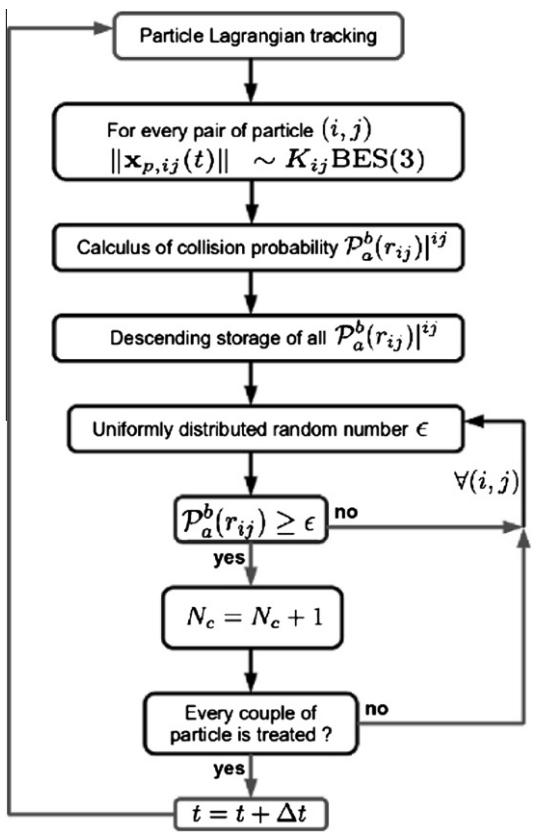


Fig. 9. Schematic algorithm of detection of collision.

Author's personal copy

probability of collision for a given pair of particles, a random number ϵ is sampled in a uniform distribution between 0 and 1 and we apply:

$$\begin{cases} \text{if } \mathscr{P}_a^b(r_{ij}) \geqslant \epsilon \Rightarrow \text{collision}, \\ \text{if } \mathscr{P}_a^b(r_{ij}) < \epsilon \Rightarrow \text{no collision}. \end{cases} \tag{26}$$

For a large inter-collision time scale, only single collisions are assumed and, each particle can have, at most, one collision during one time step. This method is applied for each couple of particles, that is $(n(n-1))/2$ times, corresponding to every possible collision to encounter.

4.2. Numerical results in the diffusive regime

As a first validation of the new approach for particle collision presented in this paper, we consider again the case of the diffusive regime for which the performance of ballistic algorithms has been tested in Section 2.2. This case corresponds to a Brownian motion of colloidal particles in a fluid at rest $\left(\mathbf{U}_{s,i}^{DNS}(t) = 0,\ \forall t\right)$ and to a diffusive regime which is naturally retrieved by the numerical scheme for the particle equations of motion, Eq. (5), as explained in Section 2.1.

The parameters used in the simulations (listed in Table 2) are similar to the ones used in Section 2.2 with the exception of the time steps and of the number of collisions (2500) which are higher to ensure a more precise comparison (Table 3).

The same numerical procedure as in Section 2.2 is applied. The number of collisions simulated is calculated at each time step from the algorithm and, by using Eq. (15), we obtain the estimated value of the collision kernel which is then compared to the theoretical value for monodispersed particles, Eq. (16).

By construction, the present algorithm tends towards a classical overlapping algorithm when the ratio $\Delta t/\tau_p$ remains small with respect to unity, for which satisfactory results are obtained. However, the present algorithm can now be extended to much larger time steps corresponding to ratios of $\Delta t/\tau_p$ which become much larger than one. Several cases have been tested for several particle diameters and several time steps are results for $\Delta t/\tau_p = \{10, 100, 1000\}$ are shown in Fig. 10. Compared to the values in Fig. 5, it can be seen that very satisfactory results are now obtained and, more importantly, that the algorithm can predict the correct value of the collision kernel independently of the particle diameter and even for very large time steps.

5. Conclusion

In this paper, a new theoretical and numerical approach has been developed for the direct simulation of particle interactions in a turbulent flow. Contrary to classical approaches which rely on the assumption of a particle ballistic displacement within a time step and are thus severely limited to small time steps, this new method allows to use much larger time steps and can be applied also for very small particle diameters which are typical of colloids. This new method appears therefore as a satisfactory candidate for the numerical prediction, in the context of DNS of the fluid flow, of the agglomeration kernels of colloidal particles with acceptable total computational costs.

Table 3
Constant parameters used in computations.

θ (K)	296.15
μ_f (Pa s)	1.83245×10^{-5}
k_B (IS)	$1.3806503 \times 10^{-23}$
ϕ	10^{-4}
$\frac{\rho_p}{\rho_f}$	1000
N_c^{th}	2500

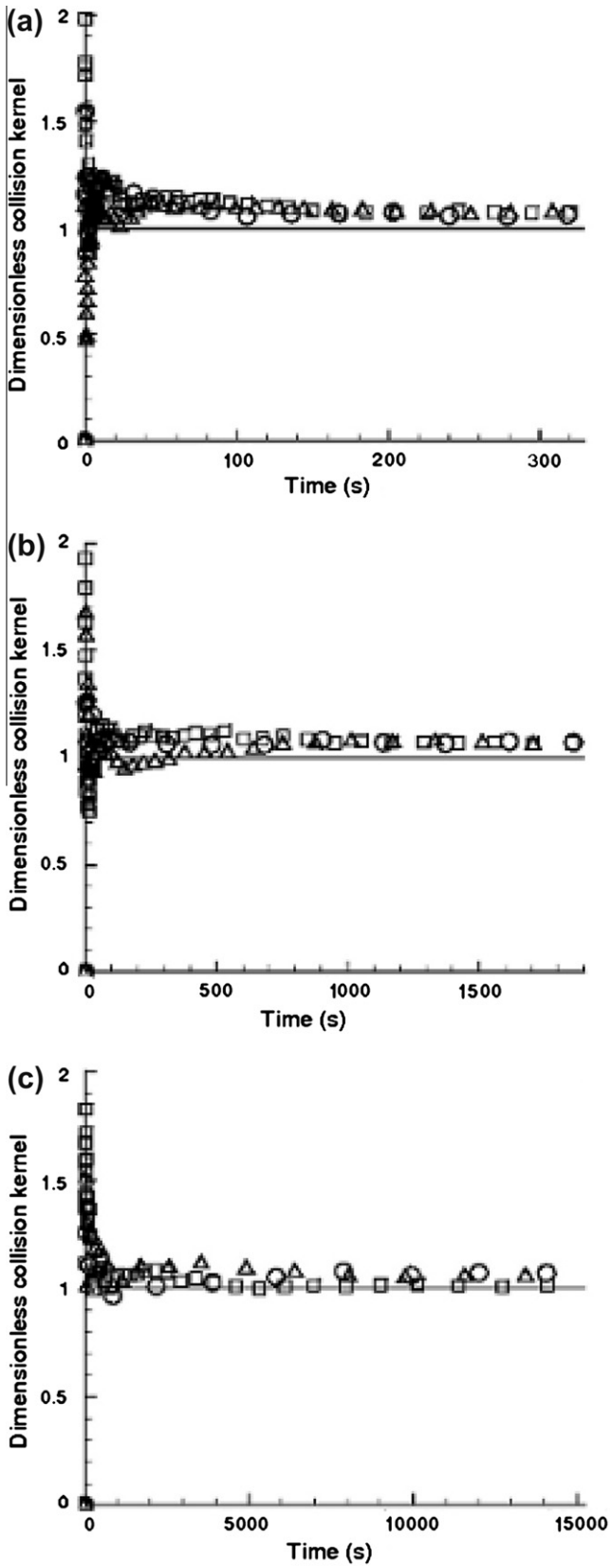


Fig. 10. Dimensionless collision kernel for the new trajectory-based approach at several time ratio $\left(\frac{\Delta t}{\tau_p} = \{10(\square), 100(\triangle), 1000(\bigcirc)\}\right)$ for 0.75 μm-diameter (a), 1 μm-diameter (b) and 2 μm-diameter (c) monodispersed particles.

Author's personal copy

The developments put forward in this paper are based on a new idea which is to consider the whole continuous relative trajectories followed by particle pairs within one time step and to calculate the probability that the minimum distance is attained along this diffusive bridge. Taking into account this probability explains the shortcomings of classical ballistic algorithms and allows to maintain accurate results for the prediction of collision kernels, even for very large time steps with respect to the particle relaxation time scale and independently of particle diameters.

The first results obtained are very promising and support the new principle of the trajectory-based approach which has been introduced here. It appears therefore necessary to continue the assessment of the present idea by completing the numerical validations. Furthermore, new developments are necessary to extend the expression of the collision probability to the more general case of particles being by Langevin-type of models. Another extension concerns specifically the physical process of the agglomeration itself, once an interaction occurs between two particles, which will have to be introduced within the present theoretical framework.

Finally, it may be worth noting that the framework of the present study corresponds to a one-way coupling setting which was retained so as to bring out in a clearer way the new method proposed here. However, introducing a two-way coupling (for higher particle loading ratios) would add a contribution to the momentum equation of fluid phase to account for the momentum exchanges between with the dispersed phase. In that case, such a treatment would appear as a correction of the fluid velocity field at the end of each time step (where the local evaluation of momentum exchanges are made), independently of the stochastic estimation of the event "collision" which is based on the starting and the arrival points of particles. In other words, present ideas can still be used as a fractional step within a complete algorithm and, therefore, it is believed that this approach can be extended to the case of two-way coupling setting.

Acknowledgment

We thank Christophe Profeta (Institut Elie Cartan, Nancy) for his numerous useful remarks and discussions.

References

Abrahamson, J., 1975. Collision rates of small particles in a vigorously turbulent fluid. Chem. Eng. Sci. 30, 1371–1379.
Adachi, Y., 1995. Dynamic aspects of coagulation and flocculation. Adv. Colloid Interface Sci. 56, 1–30.
Borodin, A.N., Salminen, P., 2002. Handbook of Brownian Motion – Facts and Formulae, second ed. Birkhauser.
Chen, M., Kontomaris, K., McLaughlin, J.B., 1998. Direct numerical simulation of droplet collisions in a turbulent channel flow. Part I: collision algorithm. Int. J. Multiphase Flow, 1079–1103.
Derjaguin, B.V., Landau, L.D., 1941. Theory of the stability of strongly charged lyophobic sol and of the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes. Acta Phys., 733–762.
Drebben, T.D., Pope, S.B., 1988. Probability density function/monte carlo simulation of near-wall turbulent flows. J. Fluid Mech. 357, 141–166.
Ho, C.A., Sommerfeld, M., 2002. Modelling of micro-particle agglomeration in turbulent flows. Chem. Eng. Sci. 57, 3073–3084.
Israelachvili, J.N., 1991. Intermolecular and Surface Forces. Academic Press.
Minier, J., Peirano, E., 2001. The PDF approach to turbulent polydispersed two-phase flows. Phys. Rep. 352, 1–214.
Minier, J.P., Peirano, E., Chibbaro, S., 2003. Weak first and second order numerical schemes for stochastic differential equations appearing in lagrangian two-phase flow modelling. Monte Carlo Methods Appl. 2003, 93–133.
Oesterlé, B., Petitjean, A., 1993. Simulation of particle-to-particle interactions in gas-solid flows. Int. J. Multiphase Flow 19, 199–211.
Pearson, H.J., Valioulis, I.A., List, E.J., 1984. Monte carlo simulation of coagulation in discrete particle-size distribution. J. Fluid Mech. 143, 367–385.
Peirano, E., Chibbaro, S., Pozorski, J., Minier, J.-P., 2006. Mean-field/pdf numerical approach for polydispersed turbulent two-phase flows. Prog. Energy Comb. Sci. 32, 315–371.
Reif, F., 1965. Fundamentals of Statistical and Thermal Physics. McGraw-Hill.
Saffman, P.G., Turner, J.S., 1956. On the collision of drops in turbulent clouds. J. Fluid Mech. 1, 16–30.
Sigurgeirsson, H., Stuart, A., Wan, W.L., 2001. Algorithms for particle-field simulation with collisions. J. Comput. Phys. 172, 766–807.
Smoluchowski, M., 1917. Versuch einer mathematischen theorie der koagulationskinetik kolloider losungen. Z. Phys. Chem. 92, 129–168.
Sommerfeld, M., 2001. Validation of a stochastic lagrangian modelling approach for inter-particle collisions in homogeneous isotropic turbulence. Int. J. Multiphase Flow 27, 1829–1858.
Sundaram, S., Collins, L.R., 1996. Numerical considerations in simulating a turbulent suspension of finite-volume particles. J. Comput. Phys. 124, 337–350.
Verwey, E.J.W., Overbeek, J.T.G., 1948. Theory of the Stability of Lyophobic Colloids. Elsevier, Amsterdam.
Wang, L.P., Wexler, A.S., Zhou, Y., 1998. Statistical mechanical descriptions of turbulent coagulation. Phys. Fluids 10, 2647–2651.
Wunsch, D., 2009. Theoretical and Numerical Study of Collision and Coalescence – Statistical Modeling Approaches in Gas-droplet Turbulent Flows. Ph.D. Thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
Yeung, P.K., Pope, S.B., 1988. An algorithm for tracking fluid particles in numerical simulations of homogeneous turbulent. J. Comput. Phys. 79, 373–416.

Bibliographie

Abrahamson, J. (1975). Collision rates of small particles in a vigorously turbulent fluid. *Chemical Engineering Science*, **30**, 1371–1379.

Adachi, Y. (1995). Dynamic aspects of coagulation and flocculation. *Advances in Colloid and Interface Science*, **56**, 1–31.

Batchelor, G. K. (1953). *The theory of homogeneous turbulence*. Cambridge University Press.

Borodin, A. N. et Salminen, P. (2002). *Handbook of Brownian Motion - Facts and Formulae*. Birkhäuser, second édition.

Brunk, B. K., Koch, D. L., et Lion, L. W. (1997). Hydrodynamic pair diffusion in isotropic random velocity fields with application to turbulent coagulation. *Physics of Fluids*, **9**, 2670–2691.

Brunk, B. K., Koch, D. L., et Lion, L. W. (1998). Turbulent coagulation of colloidal particles. *Journal of Fluid Mechanics*, **364**, 81–113.

Chen, M., Kontomaris, K., et McLaughlin, J. B. (1998a). Direct numerical simulation of droplet collisions in a turbulent channel flow. part i : collision algorithm. *International Journal Of Multiphase Flow*, p. 1079–1103.

Chen, M., Kontomaris, K., et McLaughlin, J. B. (1998b). Direct numerical simulation of droplet collisions in a turbulent channel flow. part ii : collision rates. *International Journal Of Multiphase Flow*, (24), 1105–1138.

Dahneke, B. E. (1983). *Theory of Dispersed Multiphase Flow*. Academic Press, New York.

Derjaguin, B. V. et Landau, L. D. (1941). Theory of the stability of strongly charged lyophobic sol and of the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes. *Acta Physico*, p. 733–762.

DiMeglio, J.-M. (1998). *Les états de la matière*. Nathan Université.

Dreeben, T. D. et Pope, S. B. (1998). Probability density function/monte carlo simulation of near-wall turbulent flows. *Journal of Fluid Mechanics*, **357**, 141–166.

Einstein, A. (1906). Investigations on the theory of brownian movement. *Collected Papers, Dover Publications*.

Friedlander, S. K. (2000). *Smoke, Dust, and Haze - Fundamentals of Aerosol Dynamics*. Oxford University Press, second édition.

Gardiner, C. W. (1985). *Handbook of Stochastic Methods for Physics, Chemistry and the Natural Sciences*. Springer, second édition.

Guingo, M. (2008). *Modélisation stochastique du dépôt et réentrainement de particules dans un écoulement turbulent*. Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré, Nancy I.

Guingo, M. (2011). Validation note of the stochastic lagrangien model of particule deposition and resuspension : major technical objective of the project mofphet-c 2. *Rapport interne EDF H-I81-2011-01336-EN*.

Ho, C. A. et Sommerfeld, M. (2002). Modelling of micro-particle agglomeration in turbulent flows. *Chemical Engineering Science*, **57**, 3073–3084.

Hopkins, M. A. et Louge, M. Y. (1991). Inelastic microstructure in rapid granular flows of smooth disks. *Physics of fluids*, **3**(1), 47–57.

Israelachvili, J. N. (1991). *Intermolecular and surface forces*. Academic Press.

Itô, K. et Henry P. McKean, J. (1965). *Diffusion processes and their Sample Paths*. Springer-Verlag.

Karatzas, I. et Shreve, S. E. (1991). *Brownian Motion and Stochastic Calculus*. Springer, second édition.

Langevin, P. (1908). Sur la théorie du mouvement brownien. *Compte Rendu de l'Académie des Sciences (Paris)*, p. 530–533.

Laviéville, J. (1997). *Simulations numériques et modélisation des intéractions entre l'entraînement par la turbulence et les collisions interparticulaires en écoulements gaz-solide*. Thèse de doctorat, Université de Rouen.

Minier, J.-P. (2006). Simulation numérique de la déposition. introduction des forces chimiques dans le module lagrangien de code saturne. *Rapport interne EDF*.

Minier, J.-P. et Peirano, E. (2001). The PDF approach to turbulent polydispersed two-phase flows. *Physics Reports*, **352**, 1–214.

Minier, J.-P., Peirano, E., et Chibbaro, S. (2003). Weak first and second order numerical schemes for stochastic differential equations appearing in lagrangian two-phase flow modelling. *Monte Carlo Methods and Applications*, **9**, 93–133.

Mohaupt, M., Minier, J.-P., et Tanière, A. (2011). A new approach for the detection of particle interactions for large-inertia and colloidal particles in a turbulent flow. *International Journal of Multiphase Flow*, **37**, 746–755.

Otto, E. et Fissan, H. (1998). Brownian coagulation of submicronique particles. *Advanced Powder Technology*, **10**, 1–20.

Otto, E., Fissan, H., Park, S., et Lee, K. (1997). Brownian coagulation in the transition regime. *Journal of Aerosol Science*, **28**, S21–S22.

Pearson, H. J., Valioulis, I. A., et List, E. J. (1984). Monte carlo simulation of coagulation in discrete particle-size distributions. part 1. brownian motion and fluid shearing. *Journal of Fluid Mechanics*, **143**, 367–385.

Peirano, E., Chibbaro, S., Pozorski, J., et Minier, J.-P. (2006). Mean-field/pdf numerical approach for polydispersed turbulent two-phase flows. *Progress in energy and combustion science*, **32**(315-371).

Pope, S. B. (2000). *Turbulent flows*. Cambridge University Press.

Profeta, C., Roynette, B., et Yor, M. (2010). *Option Prices as Probabilities : A New Look at Generalized Black-Scholes Formulae*. Springer Finance.

Reade, W. C. et Collins, L. R. (2000). A numerical study of the particle size distribution of an aerosol undergoing turbulent coagulation. *Journal of Fluid Mechanics*, **415**, 45–64.

Reif, F. (1965). *Fundamentals of statistical and thermal physics*. McGraw-Hill.

Russel, W. B., Saville, D. A., et Schowalter, W. R. (1989). *Colloidal Dispersions*. Cambridge University Press.

Saffman, P. G. et Turner, J. S. (1956). On the collision of drops in turbulent clouds. *Journal of Fluid Mechanics*, **1**(1), 16–30.

Sakiz, M. (1999). *Simulation numérique lagrangienne et modélisation eulérienne d'écoulements diphasiques gaz-particules en canal vertical*. Thèse de doctorat, École Nationale des ponts et Chaussées.

Sigurgeirsson, H., Stuart, A., et Wan, W. L. (2001). Algorithms for particle-field simulation with collisions. *Journal Of Computational Physics*, **172**, 766–807.

Smoluchowski, M. (1906). Sur le chemin moyen parcouru par les molécules d'un gaz et sur son rapport avec la théorie de la diffusion. *Bulletin International de l'Académie des Sciences de Cracovie*, p. 202–213.

Smoluchowski, M. (1917). *Z. Physik Chem.*, **92**(129).

Sundaram, S. et Collins, L. R. (1996). Numerical considerations in simulating a turbulent suspension of finite-volume particles. *Journal of Computational Physics*, **124**, 337–350.

Tanière, A. (2010). *Modélisation stochastique et simulation des écoulements diphasiques dispersés et turbulents*. Habilitation à diriger les recherches de l'Université Henri Poincaré - Nancy I.

Trzeciak, T. M., Podgórski, A., et Marijnissen, J. C. M. (2006). Stochastic calculation of collision kernels : Brownian coagulation in concentrated systems. Dans *WCPT5,Vol.2 : Fifth World Congress on Particle Technology*. Orlando, USA.

Verwey, E. J. W. et Overbeek, J. T. G. (1948). *Theory of the stability of lyophobic colloïds*. Elsevier.

Wunsch, D. (2009). *Theoretical and numerical study of collision and coalescence - Statistical modeling approaches in gas-droplet turbulent flows*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.

Nancy-Université
INPL

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :
Monsieur Pozorski JACEK, Professeur, Académie des Sciences, Gdansk, Pologne
Monsieur Mikhael GOROKHOVSKI, Professeur, Ecole Centrale de Lyon

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur MOHAUPT Mikael

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Modélisation et simulation de l'agglomération des colloïdes dans un écoulement turbulent. "

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : **« Mécanique et Energétique »**

Fait à Vandoeuvre, le 17 octobre 2011
Le Président de l'I.N.P.L.,
F. LAURENT

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE - NANCY

Institut National Polytechnique de Lorraine
inpl@inpl-nancy.fr | www.inpl-nancy.fr

2 av. de la Forêt de Haye | BP 3
54501 Vandœuvre-lès-Nancy Cedex
FRANCE
Tél. : +33(0)3 83 59 59 59
Fax : +33(0)3 83 59 59 55

Modélisation et simulation de l'agglomération des colloïdes dans un écoulement fluide turbulent

Ce travail de thèse porte sur la modélisation et la simulation numérique de la collision et l'agglomération de particules colloïdales dans un écoulement fluide turbulent par une nouvelle méthode. Ces particules sont sensibles dans une même mesure aux effets brownien et turbulent. La première partie du travail concerne la modélisation du phénomène physique, allant du transport des particules jusqu'à la modélisation des forces d'adhésion physico-chimiques en passant par l'étape cruciale qui est la détection des interactions entre les particules (collisions). Cette détection des collisions est dans un premier temps étudiée par rapport aux algorithmes classiques existants dans la littérature. Bien que très efficaces dans le cadre de particules soumises à l'agitation turbulente, les conclusions de cette partie exposent les limites des méthodes existantes en termes de coûts numériques, pour le traitement d'un ensemble de colloïdes soumis au mouvement brownien. La seconde partie du travail oriente alors les travaux vers une vision novatrice du phénomène physique considéré. Le caractère diffusif aléatoire est alors considéré d'un point de vu stochastique, comme un processus conditionné dans l'espace et dans le temps. Ainsi, une nouvelle méthode de détection et de traitement des collisions de particules soumises exclusivement à un mouvement diffusif est présentée et validée, exposant un gain considérable en termes de coûts numériques. Le potentiel de cette nouvelle approche est validé et ouvre de nombreuses pistes de réflexion dans l'utilisation des méthodes stochastiques appliqués à la représentation de la physique.

Mots-clés : écoulement diphasique, mouvement brownien, turbulence, agglomération, collision, modélisation stochastique, pont brownien, pont de diffusion

Modeling and simulation of the agglomeration of colloidal particles in a turbulent flow

This Ph.D thesis focuses on modeling and numerical simulation of collision and agglomeration of colloidal particles in a turbulent flow by using a new method. These particles are affected by both Brownian and turbulent effects. The first part of the work deals with current models of the physical phenomenon, from the transport of single particles to a model for physico-chemical adhesive forces, and points out the critical step which is the detection of interactions between particles (collisions). This detection is initially studied by applying classical algorithms existing in the literature. Although they are very efficient in the context of particles subject to turbulent agitation, first conclusions show the limitations of these existing methods in terms of numerical costs, considering the treatment of colloids subject to the Brownian motion. The second part of this work proposes a new vision of the physical phenomenon focusing on the random diffusive behaviour. This issue is adressed from a stochastic point of view as a process conditionned in space and time. Thus, a new method for the detection and treatment of collisions is presented and validated, which represents considerable gain in terms of numerical cost. The potential of this new approach is validated and opens new opportunities for the use of stochastic methods applied to the representation of physics.

Keywords : two-phase flow, Brownian motion, turbulence, collision, agglomeration, stochastic models, Brownian bridge, diffusion bridge