

Alexandre SIMÉON
Numéro d'étudiant : 21102212
UFR Sciences et Techniques de Rouen
Master Physique, Mécanique, Sciences de l'Ingénieur, Énergie, Fluides et
Environnement 2ème année

Rapport de stage :

**GÉNÉRATION NUMÉRIQUE
D'AGRÉGATS DE NANOPARTICULES
PRÉSENTANT DES MORPHOLOGIES
RÉALISTES**

Durée du stage : du 01 février 2016 au 30 juin 2016 étendue au 29 juillet 2016
Lieu du stage : Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie
(CORIA)

Tuteur de stage : Jérôme YON, Maître de Conférences - INSA de Rouen
Rapporteur : Claude ROZÉ, Professeur – Université de Rouen

Année scolaire 2015/2016

Résumé

Les propriétés radiatives des particules de suie sont encore mal connues du fait de leur morphologie complexe. Pour évaluer numériquement les propriétés radiatives d'une particule de suie, il faut pouvoir générer de façon virtuelle des agrégats de type suie. C'est le rôle du code numérique d'agrégation de type amas-amas limitée par la diffusion (DLCA). Il constitue aujourd'hui la méthode de référence car il génère des morphologies similaires à celles des suies observées expérimentalement. Néanmoins le code DLCA ne modélise pas le recouvrement des monomères visualisé au microscope électronique en transmission. C'est pourquoi le code DLCA du CORIA a subi un développement numérique poussé pour le rendre plus physique et pour prendre en compte le recouvrement. Tout d'abord, la mise en œuvre du code DLCA sans recouvrement a consisté à supprimer le recouvrement non voulu qui se produisait de temps à autre à cause des conditions aux limites périodiques mal définies. Ces dernières ont été améliorées. Un modèle plus physique de conversion du rayon de giration d'un agrégat en diamètre de mobilité a été implémenté dans le programme pour évaluer le plus fidèlement possible les propriétés diffusionnelles des agrégats. Ce modèle est capable de générer une grande variabilité dans la structure des agrégats. Ensuite, la modélisation de la croissance de surface des monomères a motivé l'établissement d'une loi de croissance physique. Elle s'est également accompagnée d'une réévaluation des propriétés physiques des agrégats telles que le volume, la surface libre, la masse, le centre de masse et le rayon de giration à cause de l'apparition du recouvrement. Un suivi dynamique des conditions locales de formation des suies dans la flamme a été abordé avec l'implémentation d'un profil de température. Les agrégats générés sont plus denses avec une structure plus compacte. La morphologie des agrégats avec du recouvrement est très réaliste car elle est très similaire à celle des suies observées expérimentalement. La modélisation de l'oxydation des suies pourra être évoquée par la suite.

Abstract

The radiative properties of soot particles are not well known because of their complex morphology. To numerically evaluate the radiative properties of a soot particle, it is necessary to generate virtually soot-like aggregates. It is the role of the diffusion limited cluster-cluster aggregation numerical code (DLCA). It is now the reference method because it generates morphologies similar to those observed experimentally. Nevertheless, DLCA code does not model the overlapping of monomers visualized by transmission electron microscope. That is why the CORIA's DLCA code underwent further numerical development to make it more physical and to take into account the overlapping. First, the implementation of the DLCA code without overlapping was to eliminate the unwanted recovery that occurred from time to time because of the conditions with ill-defined periodic boundary. These have been improved. A more physical model of converting the gyration radius of an aggregate to the mobility diameter has been implemented in the program to assess as accurately as possible the diffusional properties of aggregates. This model is capable of generating a large variability in the aggregate structure. Then, the modelling of the monomers surface growth has motivated the development of a physical law of growth. It has also been accompanied by a revaluation of the physical properties of aggregates such as volume, the free surface, mass, centre of mass and the radius of gyration due to the onset of recovery. Dynamic monitoring of local conditions of soot formation in the flame was addressed with the implementation of a temperature profile. Generated aggregates are denser with a more compact structure. The morphology of the aggregates with the overlapping is very realistic because it is very similar to soot observed experimentally. The modelling of the oxidation of soot particles may be mentioned later.

Table des matières

Résumé	i
Abstract	ii
Table des matières	iii
Liste des figures	v
Liste des tableaux	viii
Avant-propos	ix
Introduction	1
Chapitre 1 : Éléments de théorie	4
1.1 Formation des particules de suie.....	4
1.2 Propriétés des agrégats fractals.....	5
1.2.1 Loi fractale : la dimension fractale et le préfacteur fractal d'ensemble ou de population	5
1.2.2 Rayons de giration, de coupure et de mobilité d'un agrégat.....	5
1.2.3 Propriétés diffusionnelles d'un agrégat	7
1.2.4 Les types de régime d'écoulement et les modes d'agrégation.....	7
1.2.5 La fonction β	8
1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules.....	8
1.3 État de l'art de l'agrégation des nanoparticules modélisée numériquement	9
Chapitre 2 : Mise en œuvre du code DLCA sans recouvrement.....	12
2.1 Améliorations et optimisations du code DLCA.....	13
2.1.1 Corrections de « bugs » et modification « légères ».....	13
2.1.2 Suppression du recouvrement non voulu	14
2.1.3 Révision des conditions aux limites périodiques	15
2.2 Implémentation du modèle β	17
2.2.1 Présentation du modèle β	17
2.2.2 Établissement d'une statistique suffisante	18
2.2.3 Étude de l'influence du diamètre modal des particules primaires	21
2.2.4 Étude de l'influence de la fraction volumique	25
2.2.5 Étude de l'influence de la température	31
2.2.6 Validation du modèle β	31
Chapitre 3 : Mise en œuvre du code DLCA avec le recouvrement des monomères.....	32

3.1 Introduction.....	33
3.2 Étude théorique.....	33
3.2.1 Loi de croissance de surface des monomères	33
3.2.2 Réévaluations du volume, de la surface libre, de la masse, du centre de masse et du rayon de giration d'un agrégat	35
3.2.3 Ajout de deux paramètres physiques importants : le nombre de coordination et le paramètre de recouvrement.....	37
3.3 Étude numérique : les modifications engendrées par la modélisation de la croissance de surface dans le code DLCA.....	38
3.4 Suivi dynamique des conditions locales de formation des suies dans une flamme.....	40
3.5 Impact de la croissance de surface des monomères : résultats et discussion.....	42
3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire	45
Chapitre 4 : Conclusions	46
Références	48
Annexes	56

Liste des figures

FIG. 1 : Morphologie fractale des agrégats de suie générés virtuellement.

FIG. 2 : Images d'une particule de suie MET de Diesel (à gauche) et d'un agrégat de suie constitué de 204 monomères généré virtuellement par le code DLCA (à droite).

FIG. 1.1 : Formation des particules de suie dans une flamme de pré-mélange.

FIG. 2.1 : Illustration du principe de superposition partie 1.

FIG. 2.2 : Illustration du principe de superposition partie 2.

FIG. 2.3 : Illustration du principe de superposition inter-agrégat.

FIG. 2.4 : Principe de fonctionnement des nouvelles conditions aux limites périodiques.

FIG. 2.5 : Prise en compte des contacts inter-agrégats oubliés auparavant.

FIG. 2.6 : Anciennes conditions aux limites périodiques (à gauche) versus nouvelles conditions aux limites périodiques (à droite).

FIG. 2.7 : Influence du nombre initial de monomères N sur la dimension fractale d'ensemble d_{fe} pour chaque cas test. Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur de la dimension fractale d'ensemble.

FIG. 2.8 : Influence du nombre initial de monomères N sur le préfacteur fractal d'ensemble k_{fe} pour chaque cas test. Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur du préfacteur fractal d'ensemble.

FIG. 2.9 : Évolution du temps CPU en fonction du nombre initial de particules primaires N dans le domaine.

FIG. 2.10 : Intervalle de confiance à 95% de la dimension fractale d'ensemble moyenne et du préfacteur fractal d'ensemble moyen calculés pour chaque série

FIG. 2.11 : Influence du diamètre modal des particules primaires $D_{p,modal}$ sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur du couple (d_{fe}, k_{fe}) .

FIG. 2.12 : Évolution temporelle du nombre d'agrégats dans le domaine pour le diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires variable.

FIG. 2.13 : Exposant cinétique z pour les différentes valeurs du diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires.

FIG. 2.14 : Évolution temporelle du régime d'écoulement et du mode d'agrégation pour le diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires variable.

FIG. 2.15 : Influence de la fraction volumique f_v du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) où chaque valeur est représentée avec son intervalle de confiance à 95%. Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur du couple (d_{fe}, k_{fe}) .

FIG. 2.16 : Évolution du préfacteur fractal d'ensemble k_{fe} en fonction de la dimension fractale d'ensemble d_{fe} . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%.

FIG. 2.17 : Évolution du temps CPU en fonction de la fraction volumique f_v du milieu.

FIG. 2.18 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différentes fractions volumiques allant d'un milieu très dilué ($f_v = 1 \text{ ppm}$) à un milieu très dense ($f_v = 10^5 \text{ ppm}$).

FIG. 2.19 : Exposant cinétique z pour différentes fractions volumiques allant d'un milieu très dilué ($f_v = 1 \text{ ppm}$) à un milieu très dense ($f_v = 10^5 \text{ ppm}$).

FIG. 2.20 : Évolution temporelle du régime d'écoulement et du mode d'agrégation pour différentes fractions volumiques allant d'un milieu très dilué ($f_v = 1 \text{ ppm}$) à un milieu très dense ($f_v = 10^5 \text{ ppm}$). Les agrégats de suie sont constitués de $N_p = 200 \pm 7$ monomères. Le facteur d'échelle est le même pour tous les agrégats.

FIG. 2.21 : Évolution du rapport entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité en fonction du nombre de particules primaires N_p contenues dans un agrégat pour $D_{p,modal} = 5 \text{ nm}$ (à gauche) et pour $D_{p,modal} = 50 \text{ nm}$ (à droite).

FIG. 2.22 : Évolution du rapport entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité en fonction du nombre de particules primaires N_p contenues dans un agrégat pour $f_v = 1 \text{ ppm}$ (à gauche) et pour $f_v = 10^5 \text{ ppm}$ (à droite).

FIG. 3.1 : Intersection de deux sphères en recouvrement.

FIG. 3.2 : Illustration de l'imprécision commise pour le centre de masse de l'agrégat non réévalué.

FIG. 3.3 : Rayon de giration R_g en fonction du nombre de particules primaires N contenues dans un agrégat pour différentes valeurs du coefficient de recouvrement [45].

FIG. 3.4 : Profils de température pour les trois cas test.

FIG. 3.5 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différents profils de température.

FIG. 3.6 : Agrégats de suie générés virtuellement par le code DLCA. L'agrégat de gauche, constitué de 153 monomères, est issu de l'agrégation sans croissance de surface. L'agrégat du milieu, constitué de 149 monomères, est issu de l'agrégation avec la loi de croissance linéaire. L'agrégat de droite, constitué de 153 monomères, est issu de l'agrégation avec la loi de croissance exponentielle.

FIG. 3.7 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différentes lois de croissance de surface.

FIG. 3.8 : Évolution temporelle du recouvrement moyen des agrégats pour différentes lois de croissance de surface.

FIG. 3.9 : Évolution temporelle de la masse moyenne des agrégats pour différentes lois de croissance de surface.

FIG. 3 : Illustration des distances inter-agrégats.

FIG. 4 : Influence de la température T du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%.

FIG. 5 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différentes valeurs de température T allant d'un milieu frais ($T = 300K$) à un milieu chaud ($T = 2000K$).

FIG. 6 : Évolution temporelle du régime d'écoulement et du mode d'agrégation pour différentes valeurs de température T allant d'un milieu frais ($T = 300K$) à un milieu chaud ($T = 2000K$).

FIG. 7 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

FIG. 8 : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

FIG. 9 : $d \geq R_1 + R_2$.

FIG. 10 : $R_1 \leq d < R_1 + R_2$.

FIG. 11 : $R_1 - R_2 \leq d < R_1$.

FIG. 12 : $d < R_1 - R_2$.

FIG. 13 : Détermination de h_1 .

FIG. 14 : Détermination de h_2 .

FIG. 15 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

FIG. 16 : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

FIG. 17 : Intersection de deux sphères en recouvrement.

FIG. 18 : Repère sphérique.

FIG. 19 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

FIG. 20 : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

FIG. 21 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

FIG. 22 : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

Liste des tableaux

TAB. 1.1 : Modélisations numériques proposées pour l'agrégation des nanoparticules.

TAB. 2.1 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact du nombre initial de particules primaires sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) .

TAB. 2.2 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact du diamètre modal des particules primaires sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle d'agglomération.

TAB. 2.3 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la fraction volumique f_v du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle d'agglomération.

TAB. 3.1 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la température T variable dans le temps sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle de l'agglomération des particules.

TAB. 3.2 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la croissance de surface sur la morphologie des agrégats et sur la dynamique temporelle de l'agglomération des particules.

TAB. 4: Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la température T sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle de l'agglomération des particules.

Avant-propos

Je tiens à remercier expressément et à témoigner toute ma reconnaissance à mon maître de stage, Jérôme YON, Maître de conférences à l'INSA de Rouen. Je le remercie pour sa disponibilité, sa bonne humeur, la qualité des échanges, pour m'avoir encadré et guidé tout au long du stage et pour son aide précieuse dans les moments les plus délicats. Je remercie également Vincent MOUREAU, chargé de recherches au Centre National de la Recherche Scientifique pour la transmission d'un fichier de données extrait de la simulation numérique aux grandes échelles d'une flamme triple de kérosène. J'exprime également ma gratitude à l'égard de l'ensemble du personnel du CORIA et plus particulièrement au groupe de recherche « Sources laser et diagnostics en milieux denses » au sein duquel s'est déroulé mon stage.

Introduction

Les particules de suie, qui sont produites par les procédés de combustion, jouent un rôle majeur dans le bilan radiatif terrestre [1]. Néanmoins, leurs propriétés radiatives (absorption, émission, diffusion de la lumière) sont encore mal connues compte tenu de leur forme complexe alors que leur évaluation est primordiale notamment pour les applications industrielles, climatiques et la métrologie optique.

Une particule de suie est un agrégat de sphérules primaires, nommées monomères, présentant une morphologie fractale c'est-à-dire une structure en branches ramifiées plus ou moins dispersées. Cette forme particulière est caractérisée par un nombre adimensionnel compris entre 1 et 3, appelé dimension fractale d_f . La dimension fractale témoigne de l'agencement des monomères au sein d'un agrégat (voir figure 1). Un agrégat de dimension fractale égale à 1 est un agrégat de type chaîne tandis qu'un agrégat de dimension fractale égale à 3 est un agrégat de type boule.

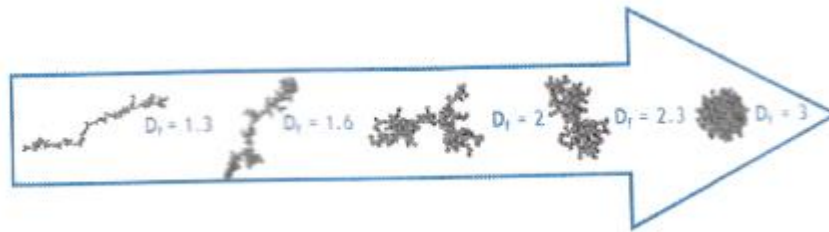


FIG. 1 : Morphologie fractale des agrégats de suie générés virtuellement [1].

Pour évaluer numériquement les propriétés radiatives d'une particule de suie, il faut pouvoir générer de façon virtuelle des agrégats de type suie. C'est pourquoi, au cours de ces cinq dernières décennies, six codes numériques d'agrégation des nanoparticules ont été développés puis améliorés pour décrire les processus physiques d'agrégation [2] : dans l'ordre d'apparition, ce sont les codes RLA, BLA, BLCA, DLCA, DLA et RLCA. Les sigles LA ou LCA désignent le type d'agrégation (LA pour une agrégation de type particule-amas limitée, LCA pour une agrégation de type amas-amas limitée). Une agrégation de type particule-amas construit un agrégat par ajouts successifs des monomères dans un domaine considéré. Une agrégation de type amas-amas génère des agrégats par la rencontre de différents agrégats en mouvements simultanés dans le domaine. Les sigles R, B et D caractérisent la manière dont l'agrégation s'effectue (R pour réaction, B pour balistique, D pour diffusion). Une agrégation limitée par la réaction est une agrégation qui résulte d'une certaine probabilité de collage lors d'une collision entre deux particules. Une agrégation balistique est une agrégation qui repose sur le mouvement balistique des particules, c'est-à-dire une trajectoire rectiligne. Une agrégation limitée par la diffusion est une agrégation qui repose sur le mouvement brownien (mouvement désordonné) des particules et la probabilité de collage lors d'une collision entre deux particules est totale.

Avec l'évolution des techniques de métrologie et de la puissance des ordinateurs, ces modèles ont subi de nombreuses corrections avec l'implémentation de modèles et de paramètres de plus en plus physiques afin de modéliser au mieux les suies observées expérimentalement. C'est en ce sens que le code DLCA constitue aujourd'hui la méthode de référence pour

générer virtuellement des agrégats de suie car c'est celui qui produit des dimensions fractales similaires à celles des suies réelles visualisées au microscope électronique en transmission (MET) donc des morphologies très proches des suies réelles.

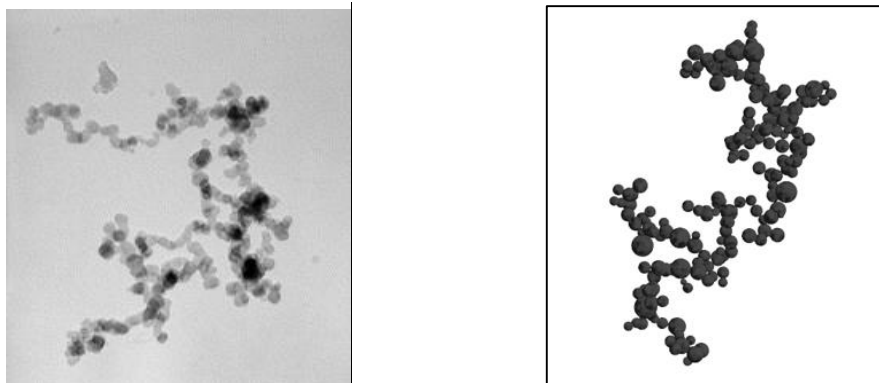


FIG. 2 : Images d'une particule de suie MET de Diesel [3] (à gauche) et d'un agrégat de suie constitué de 204 monomères généré virtuellement par le code DLCA (à droite).

Néanmoins, le code DLCA présente un certain nombre de limites. En effet, le code DLCA est purement diffusionnel alors qu'en début d'agrégation les sphérules primaires sont de petites tailles et possèdent plutôt un mouvement balistique. Le recouvrement des sphérules primaires, caractérisé par le chevauchement des monomères, visible sur la figure 2 (image de gauche), dû à leur croissance de surface, n'est pas pris en compte par le code DLCA car très peu d'études permettent la génération physique des agrégats intégrant ce recouvrement. Quand il est traité, il est seulement introduit en post-traitement. Le code DLCA ne prend pas non plus en charge le suivi dynamique des conditions locales de formation des particules de suie dans une flamme (température locale, croissance de surface et oxydation des suies). Le code DLCA ne modélise pas la transition continue de la matière d'une sphérule à une autre, nommée gangue, observable sur la figure 2 (image de gauche). Enfin, aucun temps de résidence physique n'est estimé dans un code DLCA.

À l'heure actuelle, le code DLCA fait toujours état d'un développement dynamique au sein de la communauté scientifique pour supprimer ces limites. D'ailleurs, Jérôme Yon a élaboré en 2009 son propre code DLCA [4] basé sur celui de Hayashi et al. [5] car dans ce dernier, les conditions thermodynamiques du gaz porteur sont explicitement prises en compte. Les avancées majeures apportées par Jérôme Yon sont l'évaluation d'un vrai temps de résidence physique qui, à ce jour, semble n'avoir jamais été réalisée par d'autres chercheurs et la prise en compte de la polydispersion en taille des monomères (diamètre des sphérules primaires différent).

Le stage proposé par Jérôme Yon dont le sujet est « Génération numérique d'agrégats de nanoparticules présentant des morphologies réalistes » s'inscrit parfaitement dans cette thématique de recherche. En effet, l'objectif du stage est de faire évoluer le code DLCA du CORIA et de montrer la faisabilité d'une génération plus réaliste d'agrégats en intégrant dans la conception des grandeurs thermodynamiques (température locale, pression), en évaluant le plus fidèlement possible le volume, la surface des particules et en permettant un recouvrement des sphérules primaires sur la base de phénomènes physiques. Une nanoparticule est un assemblage d'atomes dont au moins l'une des dimensions est à l'échelle nanométrique, soit inférieure à cent nanomètres. Une morphologie réaliste est une forme similaire à celle de suies

réelles c'est-à-dire qui prend en compte le recouvrement des monomères, la gangue au niveau du contact entre eux et des conditions thermodynamiques physiques.

Dans un premier temps, une recherche bibliographique sera effectuée afin de dresser un état de l'art de l'agrégation des nanoparticules modélisée numériquement, de positionner le travail demandé pour le stage et d'acquérir les connaissances nécessaires à la bonne compréhension des phénomènes physiques mis en jeu et des tenants et aboutissants des tâches à accomplir. Dans un deuxième temps, le code DLCA actuel sera pris en main pour appréhender, d'une part, le langage de programmation et d'autre part, les fonctions du code. Dans un troisième temps, des modèles et des paramètres physiques, préalablement étudiés, seront implémentés dans le programme. Les résultats issus des simulations numériques feront l'objet d'interprétations physiques et seront comparés le mieux possible avec ceux de la littérature.

Les moyens mis à disposition pour le bon déroulement du stage sont un ordinateur de bureau, un outil de création numérique (Qt Creator) et des logiciels de traitement de données (Microsoft Excel, TableCurve, Scilab, POV-RAY). Qt Creator est un programme tout-en-un qui comprend un environnement de développement pour développer en C++, optimisé pour compiler des projets utilisant Qt et un éditeur de fenêtres qui permet de dessiner facilement le contenu des interfaces à la souris [6]. Microsoft Excel est un logiciel tableur de la suite bureautique Microsoft Office qui sera principalement utilisé pour tracer les graphes. TableCurve est un logiciel proposant le meilleur ajustement possible des courbes et la meilleure équation pour décrire les données expérimentales qui permettra d'extraire la valeur de la dimension fractale avec son intervalle de confiance à 95%. Scilab est un logiciel libre de calcul numérique et POV-RAY est un logiciel de traitement d'images. À eux deux ils permettront de visualiser les agrégats générés virtuellement. Le codage utilisé pour développer les simulations numériques est le langage C++ sous environnement Qt.

Ce rapport de stage comporte quatre chapitres. Le premier chapitre apporte les éléments de théorie nécessaires à la compréhension de la physique d'agrégation des nanoparticules par la description de la formation théorique des particules de suie et par la présentation des propriétés physiques des agrégats de suie. Un état de l'art de l'agrégation des nanoparticules modélisée numériquement est dressé pour comprendre les bases et les phénomènes physiques sur lequel repose le code DLCA actuel, pour situer précisément le niveau d'avancement du code DLCA actuel et les modifications à apporter selon les travaux menés par les autres scientifiques. Le deuxième chapitre regroupe les améliorations et les optimisations apportées au code et l'intégration du modèle semi-empirique récemment développé par Yon et al. [7]. Le troisième chapitre explique la mise en place d'un modèle de croissance de surface des particules primaires et tous les changements induits par l'apport de cette nouvelle modélisation. L'implémentation de conditions thermodynamiques réalistes est traitée. Le dernier chapitre résume l'avancée du code DLCA depuis le début du stage, les principaux résultats obtenus à partir des différentes études élaborées et les pistes privilégiées pour le développement du code dans le but de le rendre encore plus physique.

Chapitre 1 : Éléments de théorie

Ce premier chapitre apporte les éléments utiles à la compréhension de la physique d'agrégation des nanoparticules de suie. Dans un premier temps, la formation théorique des particules de suie est abordée puis suivie, dans un deuxième temps, de la description des propriétés physiques des agrégats fractals. Dans un troisième temps, l'état de l'art de l'agrégation des nanoparticules modélisée numériquement est dressé pour situer l'état d'avancement du code DLCA actuel et le travail à effectuer sur le code.

1.1 Formation des particules de suie

La formation des suies se déroule en quatre étapes [1,8] : pyrolyse, nucléation, coagulation / croissance de surface, agglomération. La figure 1.1 illustre les mécanismes de formation des particules primaires.

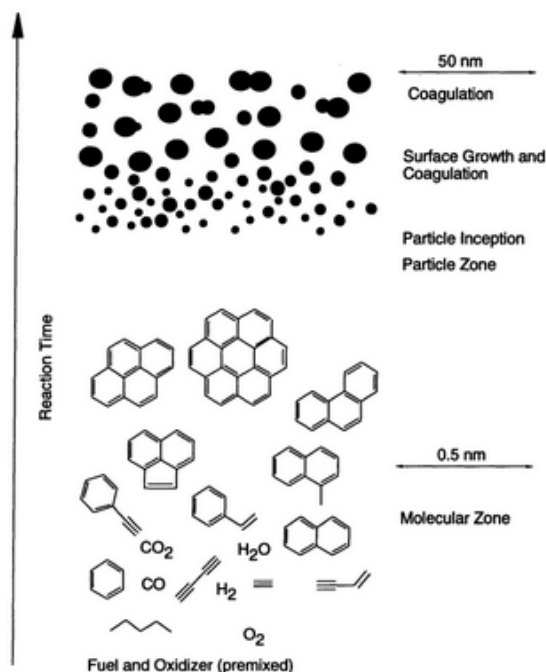


FIG. 1.1 : Formation des particules de suie dans une flamme de pré-mélange [8].

La particule de suie se crée dans les zones riches et réactives d'une flamme grâce à des réactions chimiques qui se réalisent en chaîne. Les produits de ces réactions chimiques sont des composés moléculaires lourds appelés Hydrocarbure Aromatiques Polycycliques (HAP). Ces précurseurs seraient issus du mécanisme réactionnel nommé H-Abstraction-C₂H₂-Addition (HACA) [9]. L'accumulation de ces HAP étant importante à certains endroits, ces derniers s'associent pour former des nucléi qui ont généralement un diamètre inférieur à deux nanomètres. Les molécules qui sont en phase gaz se déposent sur ces nucléi par condensation contribuant à une croissance rapide des particules qui, à leur tour, coagulent avec d'autres particules pour former des particules de dimension fractale égale à trois [10], c'est-à-dire des particules sphériques. Ces particules sont qualifiées de particules primaires ou monomères. Ces dernières s'agglomèrent ensuite par un processus collisionnel de type diffusionnel provoqué par le bombardement incessant des molécules présentes dans la flamme pour

engendrer des agrégats de suie [4]. Les particules primaires au sein des agrégats restent liées par les importantes forces attractives mises en jeu (forces de Van der Waals). La croissance de surface induite par les réactions chimiques à la surface des monomères se poursuit en cours d'agglomération et est responsable du recouvrement (et de la gangue) souvent observé sur les images TEM (voir image de gauche de la figure 2).

1.2 Propriétés physiques des agrégats fractals

1.2.1 Loi fractale : la dimension fractale et le préfacteur fractal d'ensemble ou de population

Un agrégat fractal est un assemblage de particules primaires présentant une structure autosimilaire de l'échelle des particules primaires à celle de la taille globale de l'agrégat [11], c'est-à-dire qui conserve sa forme quelle que soit l'échelle observée. C'est la définition même d'un objet de nature fractale. Cette notion d'autosimilarité permet de définir une loi de puissance liant la masse de l'agrégat à sa taille. Cette loi de puissance est la loi fractale et s'écrit [11, 12, 13] :

$$N_p = k_{fe} \left(\frac{2R_g}{D_p} \right)^{d_{fe}} \quad (1.1)$$

N_p est le nombre de particules primaires contenues dans un agrégat proportionnel à la masse de l'agrégat. Le paramètre $\frac{2R_g}{D_p}$ est le paramètre de taille réduit de l'agrégat où R_g est le rayon de giration de l'agrégat et D_p est le diamètre moyen des monomères de l'agrégat. d_{fe} est la dimension fractale d'ensemble et k_{fe} est le préfacteur fractal d'ensemble.

La loi fractale est un marqueur de la description de la morphologie des agrégats [4]. En effet, le couple (d_{fe}, k_{fe}) est un indicateur du taux d'empilement des monomères constituant un agrégat. Il est, par conséquent, représentatif de la structure spatiale des particules primaires mais pas spécifiquement au sein d'un agrégat mais bien d'un point de vue global.

1.2.2 Rayons de giration, de coupure et de mobilité d'un agrégat

Le rayon de giration R_g d'un agrégat est un paramètre purement géométrique [4, 11]. Il est indépendant du régime d'écoulement (voir 1.2.4 Les types de régime d'écoulement et les modes d'agrégation) et de l'environnement dans lequel se trouve la particule. C'est un rayon caractéristique de la répartition spatiale de la masse. Il est lié au moment d'inertie de l'agrégat et il intervient dans l'évaluation de l'interaction élastique de la lumière avec les agrégats générés [1].

Pour un agrégat polydispersé en taille de monomères sans recouvrement ni gangue au niveau du contact entre eux, le rayon de giration se définit tel que [4] :

$$R_g^2 = \frac{3 \sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^5}{5 \sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3} + \frac{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3 L_i^2}{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3} \quad (1.2)$$

$R_{p,i}$ est le rayon du monomère i et L_i est la distance le centre de masse du monomère i et celui du centre de masse de l'agrégat.

Pour un agrégat monodispersé en taille de monomères sans recouvrement ni gangue au niveau du contact entre eux, la relation 1.2 se simplifie :

$$R_g^2 = \frac{3}{5} R_p^2 + L_i^2 \quad (1.3)$$

Il est à noter que pour une particule primaire le rayon de giration est égal à :

$$R_g^2 = \frac{3}{5} R_p^2 \quad (1.4)$$

Le rayon de coupure R_c d'un agrégat est son rayon d'enveloppe, c'est-à-dire le rayon maximal depuis le centre de masse de l'agrégat.

Contrairement au rayon de giration, le rayon de mobilité R_m dépend du régime d'écoulement et de la nature du gaz porteur, c'est-à-dire des conditions thermodynamiques. Par définition, le diamètre de mobilité D_m est directement lié à la force de trainée s'exerçant sur la particule [7]. Il fait appel à la mobilité mécanique B qui est représentative des forces de trainées agissant sur les particules de forme quelconque avec ou sans champs de force supplémentaires. Son expression est [4] :

$$B = \frac{Cc(D_m)}{3\pi\eta D_m} \quad (1.5)$$

Cc est le facteur correctif de Cunningham dont la forme est celle proposée empiriquement par Allen and Raabe en 1985 [14] :

$$Cc(D_m) = 1 + Kn \left(A + B \exp \left(-\frac{C}{Kn} \right) \right) \quad (1.6)$$

Les valeurs des constantes A , B et C sont celles rapportées par Willeke and Baron en 1993 [15]. Elles valent respectivement $A = 1,142$, $B = 0,558$ et $C = 0,999$. Ce coefficient permet l'évaluation du coefficient de diffusion pour un régime d'écoulement quelconque.

η est la viscosité dynamique du gaz porteur définie par Sutherland [16] :

$$\eta = \eta_r \left(\frac{T_r + S}{T + S} \right) \left(\frac{T}{T_r} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (1.7)$$

$\eta_r = 1,8 \cdot 10^{-5} kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$ est la viscosité dynamique du gaz (ici de l'air) dans les conditions normales de température et de pression, soit $T_r = 293 K$ et $P_r = 101300 Pa$. $S = 110 K$ est la constante de Sutherland.

Le diamètre de mobilité d'un agrégat permet de calculer les propriétés diffusionnelles des agrégats (voir 1.2.3 Propriétés diffusionnelles d'un agrégat) qui sont déterminées à chaque instant de leur formation grâce à son évaluation par le modèle β (voir 1.2.5 La fonction β). Il est à noter que pour une particule primaire le diamètre de mobilité représente son diamètre réel.

1.2.3 Propriétés diffusionnelles d'un agrégat

En se plaçant à l'échelle d'une particule primaire, le gaz porteur est considéré comme un milieu corpusculaire et non plus comme un milieu continu [4]. L'agitation thermique des particules primaires dépend alors de la nature du gaz et des conditions thermodynamiques appliquées. Le mouvement conféré aux particules primaires est le mouvement brownien, c'est-à-dire un mouvement désordonné induit par les collisions avec les molécules du gaz porteur. Il se traduit par un déplacement en lignes brisées dans des directions aléatoires. La longueur moyenne de ce trajet est le libre parcours moyen λ_p . Le libre parcours moyen d'un agrégat s'écrit [4] :

$$\lambda_p = \frac{8D}{\pi \bar{v}} \quad (1.8)$$

\bar{v} est la vitesse moyenne de translation de l'agrégat selon la distribution de Maxwell-Boltzmann et D est le coefficient de diffusion de l'agrégat. Leur expression est respectivement [4] :

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m_p}} \quad (1.9)$$

$$D = k_B T B \quad (1.10)$$

$k_B = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ est la constante de Boltzmann, T est la température en Kelvin, B est sa mobilité mécanique, $m_p = \rho_p N_p \frac{D_p^3}{6}$ est la masse de l'agrégat en kg où ρ_p est sa masse volumique, N_p le nombre de particules primaires en son sein et D_p est son diamètre moyen.

La durée moyenne de déplacement d'un agrégat est égale au rapport entre le libre parcours moyen et la vitesse de translation d'un agrégat [4]. Soit :

$$\tau = \frac{\lambda_p}{\bar{v}} \quad (1.11)$$

1.2.4 Les types de régime d'écoulement et les modes d'agrégation

Le régime d'écoulement se caractérise par le nombre de Knudsen Kn . Ce nombre adimensionnel se définit comme le rapport entre le libre parcours moyen λ des molécules du gaz porteur et le rayon de mobilité R_m de la particule [4]. Soit :

$$Kn = \frac{\lambda}{R_m} \quad (1.12)$$

Le libre parcours moyen λ des molécules du gaz porteur a pour expression [4] :

$$\lambda = \lambda_r \left(\frac{P_r}{P} \right) \left(\frac{T}{T_r} \right) \left(\frac{1 + \frac{S}{T_r}}{1 + \frac{S}{T}} \right) \quad (1.13)$$

$\lambda_r = 66.5nm$ est le libre parcours moyen du gaz (ici de l'air) dans les conditions normales de température et de pression, soit $T_r = 293 K$ et $P_r = 101300 Pa$. $S = 110 K$ est la constante de Sutherland [16].

Si $Kn \gg 1$ alors la taille de la particule est très petite devant le libre parcours moyen des molécules du gaz porteur. La particule est en régime dit moléculaire libre. Si $Kn \ll 1$ alors la taille de la particule est très grande devant le libre parcours moyen des molécules du gaz porteur. La particule est en régime dit continu. Pour les valeurs intermédiaires de Kn la particule est en régime dit transitoire.

Le mode d'agrégation se caractérise par la quantité $\frac{lp_m}{dist}$ qui exprime le rapport entre le libre parcours moyen lp_m moyenné sur l'ensemble des particules et la distance bord à bord moyenne $dist$ entre les différentes particules moyennée sur l'ensemble des agrégats [4]. Un rapport élevé signifie que le libre parcours moyen est grand devant la distance inter-particulaire c'est-à-dire que les collisions sont de nature balistique, induites par la trajectoire rectiligne des particules. Le mode d'agrégation est dit balistique. Un rapport faible signifie que le libre parcours moyen est petit devant la distance inter-particulaire c'est-à-dire que les collisions sont de nature diffusionnelle, induites par le mouvement brownien des particules. Le mode d'agrégation est dit diffusionnel.

1.2.5 La fonction β

La fonction β permet de convertir le rayon de giration R_g en rayon de mobilité R_m . Elle a été introduite pour la première fois en 1993 par Rogak et al. telle que [17] :

$$\beta = \frac{R_g}{R_m} \quad (1.14)$$

En l'évaluant numériquement ces auteurs ont observé que le rapport $\frac{R_g}{R_m}$ augmente avec la taille des particules jusqu'à atteindre une valeur plateau qui dépend d'ailleurs de la dimension fractale. Cette première étude a été reprise puis améliorée par de nombreux auteurs qui ont confirmé le comportement établi [18]. La fonction β dépend d'au moins quatre paramètres [18, 19, 20] que sont la dimension fractale d_f , le nombre de Knudsen Kn , le nombre de particules primaires N_p et le diamètre D_p des particules primaires. Le rôle de la fonction β est d'évaluer le diamètre de mobilité des agrégats à chaque instant de l'agglomération en tenant compte de leur morphologie fractale et du régime d'écoulement qui peut éventuellement être amené à se modifier au cours de l'agrégation des nanoparticules. La bonne appréciation de ce modèle est donc primordiale pour la caractérisation de la morphologie des agrégats.

1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules

La cinétique d'agglomération des particules est décrite par la fonction de collision de Smoluchowski qui montre comment la concentration en particules change avec le temps [21]. Aux premiers instants de l'agglomération des particules, l'approche de la coalescence est

valide car l'aérosol est quasi-monodispersé en taille de particules. L'équation de Smoluchowski se simplifie alors sous la forme (voir annexe 1 pour la démonstration) [4]:

$$\frac{1}{N(t)} - \frac{1}{N(0)} = \frac{K}{2V_{ol}} t \quad (1.15)$$

$N(t)$ est le nombre de particules à l'instant t , $N(0)$ est le nombre initial de particules, K est le paramètre de coalescence, V_{ol} est le volume du domaine considéré et t est le temps. Cette formule montre que l'inverse du nombre de particules doit être une fonction affine du temps aux premiers instants de l'agglomération.

Aux grands instants de l'agglomération, l'approche fractale est valide car la nature auto-similaire des agrégats s'impose. L'approche de coalescence n'est donc plus valable. L'équation de Smoluchowski se simplifie alors sous la forme (voir annexe 1 pour la démonstration) [4]:

$$\frac{1}{N(t)} - \frac{1}{N(0)} \propto t^z \quad (1.16)$$

L'inverse du nombre d'agrégats à chaque instant $N(t)$ est proportionnel à un temps t élevé à une puissance z appelée exposant cinétique [22]. Ce dernier est proche de 0,8 en régime moléculaire libre, de l'ordre de 1 en régime continu et proche de 2 en régime balistique [22, 23]. Les relations 1.16 et 1.17 seront exploitées pour les études menées sur la cinétique d'agglomération afin de la caractériser.

1.3 État de l'art de l'agrégation des nanoparticules modélisée numériquement

Cette partie dresse un état de l'art de la modélisation des agrégats de nanoparticules afin de situer le niveau d'avancement du code DLCA actuel comparé aux autres codes DLCA présents dans la littérature. Le but est de faire apparaître les défauts et les limites du code DLCA actuel et de rebondir sur les innovations à apporter qui feront l'objet du stage.

Les revues et les publications scientifiques sont retenues selon les principaux critères physiques d'un code DLCA qui sont regroupés sous la forme d'un tableau synthétique (voir tableau 1.1).

L'absence de croix dans certaines cases du tableau signifie que l'information n'a pas été clairement explicitée voire non mentionnée dans la revue ou la publication scientifique en question. Les cases colorées en vert correspondent aux critères physiques d'un code DLCA.

Au regard des éléments figurant dans le tableau 1.1, le code DLCA actuel semble être le plus physique car c'est celui qui compte le plus de cases vertes. Néanmoins, il n'est pas exempt de défauts et des améliorations sont à apporter pour le rendre encore plus physique. Par exemple, le code DLCA actuel ne modélise pas la croissance de surface des particules primaires. Par conséquent, le recouvrement induit par la croissance de surface des monomères n'est pas considéré. De plus, la température est imposée constante ce qui a pour effet de ne pas prendre en compte le suivi dynamique des conditions locales de formation des suies dans la flamme. Enfin, la transition continue de la matière entre deux monomères est également écartée.

Publications scientifiques		[29]	[23]	[4]	[5]	[26]	[27]	[25]
Type d'agrégation	DLCA	X	X	X	X	X		X
	RLCA							
	BLCA							
	DLA							
	RLA						X	
	BLA							
	Sur réseau						X	
	Hors réseau	X	X	X	X	X		X
Conditions aux limites périodiques				X	X			
Temps de résidence physique				X				
Prise en compte d'un profil de température						X		
Trajectoire des monomères / agrégats	Libre parcours moyen physique	X		X	X			
	Libre parcours moyen non physique					X		X
	Le long d'un maillage						X	
Mouvement des agrégats	Translation	X	X	X	X	X	X	X
	Rotation		X					X
Diamètre des monomères	Physique	X		X	X	X		
	Non physique						X	X
Type de distribution en taille des particules	Mono dispersée	X			X	X	X	X
	Poly dispersée	X		X				
Type de régime d'écoulement	Continu			X				
	Transitoire			X				
	Moléculaire libre	X	X	X	X	X		
Modélisations physiques	Croissance de surface		X			X		
	Recouvrement	X	X			X		
	Gangue	X						
	Potentiel électrique						X	

TAB. 1.1 : Modélisations numériques proposées pour l'agrégation des nanoparticules.

Deux types d'agrégation viennent s'ajouter à celles définies en introduction : ce sont les agrégations de type sur réseau (non physique) et hors réseau (physique). Un algorithme d'agrégation sur réseau consiste à positionner les particules dans une ligne et une colonne d'une matrice ou d'un réseau [24] puis à les déplacer verticalement ou horizontalement. Deux particules s'agrègent lorsqu'elles se retrouvent l'une à côté de l'autre. Un algorithme d'agrégation hors réseau consiste à déplacer les particules dans une direction quelconque [24]. Les particules ne sont plus contraintes à se mouvoir le long d'un maillage. Deux particules s'agglomèrent quand leur rayon respectif se chevauche.

Les conditions aux limites périodiques permettent de simuler un milieu semi-infini et permettent surtout un gain de temps de calcul considérable. En effet, le rôle des conditions aux limites périodiques est de réintroduire une particule dans le domaine lorsqu'elle en sort. Cela évite de simuler un très grand système pour éviter la sortie des particules qui se traduirait par un temps de calcul gigantesque. L'estimation d'un temps de résidence physique autorise la simulation d'un vrai temps de formation des particules de suie.

Un profil de température permet de tenir compte des conditions locales de formation des suies.

Un libre parcours moyen dit physique tient compte explicitement des conditions thermodynamiques du milieu et des caractéristiques propres à chaque particule. Un libre parcours moyen dit non physique ne prend pas en compte les conditions thermodynamiques appliquées. Dans ce cas, les particules sont amenées à se déplacer d'une longueur fixée arbitrairement ou sur une distance égale à son diamètre [25, 26]. La trajectoire d'une particule le long d'un maillage impose des changements de directions multiples de 90° ce qui n'est pas réaliste [27].

Le diamètre d'un monomère dit physique est un diamètre réaliste tandis qu'un diamètre dit non physique est un diamètre qui ne correspond pas à la vraie taille d'un monomère. Un diamètre non physique est souvent fixé à l'unité [25, 27].

Une distribution monodispersée en taille de monomères signifie que toutes les particules primaires ont le même diamètre. Elle n'est pas représentative des suies réelles observées expérimentalement car elles sont composées de monomères de tailles différentes. Une distribution polydispersée en taille de monomères signifie que les particules primaires ont un diamètre différent ce qui reflète la réalité.

Comme énoncé dans l'introduction, le code DLCA développé par J. Yon [4] reprend la structure algorithmique du code DLCA élaboré par Hayashi [5] car ce dernier tient compte expressément des conditions thermodynamiques (température et pression) du gaz porteur. Par conséquent, chaque particule possède son propre coefficient de diffusion et diffuse selon son propre libre parcours moyen. Tous les régimes d'écoulement sont pris en compte grâce à l'introduction du facteur de Cunningham (voir 1.2.2 Rayons de giration, de coupure et de mobilité d'un agrégat) qui autorise la transition d'un régime à un autre au cours de l'agrégation. La polydispersion en taille des monomères est prise en compte par une distribution en taille des diamètres suivant une loi normale ou log-normale. Les agrégats générés sont donc polydispersés en taille de monomères. Les monomères sont générés aléatoirement et uniformément dans un domaine cubique virtuel présentant des conditions aux limites périodiques permettant la simulation d'un milieu semi-infini. La fraction volumique de

matière de la simulation est fixée par la largeur du cube, le diamètre des monomères et le nombre initial de monomères dans le domaine. En jouant sur ces paramètres, un milieu dense comme un milieu dilué peut être simulé. Un vrai temps de résidence physique est estimé à l'aide d'une règle de sélection des particules qui dépend de la durée inter-collisionnelle et qui respecte physiquement la progression temporelle globale même si le temps caractéristique de déplacement diffère d'une particule à une autre. La description détaillée du fonctionnement du code numérique est fournie en annexe 2.

Le mouvement de rotation des particules simulé par Sutherland et Goodarz-Nia [25] est introduit par la définition d'une matrice de rotation.

La modélisation d'un potentiel électrique mise en œuvre par Richter, Sander et Chen [27] consiste à attribuer aléatoirement des charges électriques négatives, neutres ou positives aux sphérules primaires. Le résultat est la génération d'agrégats compacts.

La prise en compte des conditions locales de formation des suies dans la flamme par P. Mitchell et M. Frenklach [26] s'est traduite par l'intégration dans leur code DLCA d'un profil de température issu d'une flamme d'éthylène laminaire prémélangée à une pression de dix bar. Dans leur modèle, le rayon des monomères est incrémenté de la valeur de la vitesse de croissance de surface multipliée par un temps caractéristique de collision pour simuler la croissance de surface des monomères. La simulation numérique se déroule dans la zone de nucléation pour montrer la forme sphérique des particules primaires.

La modélisation de la croissance de surface réalisée par Al Zaitone et al. [28] est introduite par une loi de croissance de la taille des monomères exponentielle au cours du temps en fonction d'un temps caractéristique de croissance. Le résultat est la génération d'agrégats compacts et denses.

Les modélisations du recouvrement et de la gangue introduites par Bescond et al [29] sont des effets post-traitement. Ces auteurs ont montré que le recouvrement est à l'origine d'une diminution du nombre de sphérules primaires dans un agrégat et que la présence d'une gangue augmente la section de dépolariation. Ces deux paramètres jouent donc un rôle primordial sur l'évaluation des propriétés radiatives des suies.

À partir des informations recensées ci-dessus, les modélisations physiques susceptibles d'être implémentées dans le code DLCA actuel sont :

- La rotation des agrégats
- La croissance de surface des monomères
- Le recouvrement des monomères
- La jointure entre deux monomères
- La prise en compte d'un profil de température voire la considération d'un suivi dynamique des conditions locales de formation de la suie dans une flamme
- Le potentiel électrique des particules

Chapitre 2 : Mise en œuvre du code DLCA sans recouvrement

Ce deuxième chapitre est consacré à la mise en œuvre du code DLCA sans recouvrement des monomères avec la fixation des bugs rencontrés dans le programme, les modifications légères

apportées au programme, l'amélioration des conditions aux limites périodiques et la mise place et l'étude du modèle semi-empirique (fonction β) évoqué en introduction suite aux corrections fournies au code DLCA. Le premier objectif de cette révision complète du code DLCA est de le rendre plus robuste en supprimant le recouvrement non voulu qui se produit de temps à autre avant sa mise en œuvre avec recouvrement qui fera l'objet du chapitre 3. Le second but est de le rendre plus physique avec l'implémentation du modèle β . Un examen annexe est également prospecté pour l'influence de la température T qui est une caractéristique thermodynamique. Cette inspection servira de préambule pour la future mise en place d'un profil de température.

2.1 Améliorations et optimisations du code DLCA actuel

Lors de la prise en main du code DLCA, plusieurs anomalies de fonctionnement des programmes de génération des agrégats (« `Generateur_DLCA` ») et d'analyse des données (« `Analyse_DLCA` ») ont été recensées comme l'arrêt inopiné de ces programmes, le gel des fenêtres graphiques, un temps de calcul parfois très long et la présence de recouvrement non souhaité lors de l'initialisation des monomères dans le domaine et pendant l'agglomération.

2.1.1 Corrections des « bugs » et modifications « légères »

Avant d'exposer les corrections fournies au programme, concentrons-nous sur celle qui n'a pas pu être apportée. En effet, des fuites de mémoire sont fortement soupçonnées dans les deux programmes : « `Generateur_DLCA` » et « `Analyse_DLCA` ». En effet, le premier programme peut cesser de fonctionner mais ceci survient rarement tandis que le second programme cesse de fonctionner plus souvent. Pour détecter les probables fuites de mémoire, les programmes devraient être exécutés avec l'outil d'analyse Valgrind qui permet de déceler ces fameuses fuites de mémoire. Néanmoins cet utilitaire n'est pas disponible pour le système d'exploitation Windows et ne semble pas avoir d'équivalent pour ce dernier. En revanche, il est opérationnel sur Ubuntu. Il faudrait donc lancer les programmes sur Ubuntu.

Le problème de la fenêtre graphique qui se fige ou qui ne répond pas pendant l'exécution de l'algorithme a été résolu grâce à l'ajout de la ligne de code « `qApp->processEvents ()` » dans la boucle du module principal du programme qui gère l'agrégation des agrégats. Cette ligne de code est une fonction qui peut être appelée lorsque le programme effectue une opération longue et qui permet de traiter tous les événements mis en attente. En fait, le programme restait prisonnier de la boucle car un grand laps de temps pouvait s'écouler avant qu'une agglomération ne se produise. Le suivi de l'avancement du calcul, matérialisé par une barre de progression qui évolue en fonction de l'agrégation des particules, est désormais disponible grâce au rafraichissement de la fenêtre.

Jusqu'à présent le calcul se poursuivait jusqu'à obtenir un unique agrégat constitué du nombre initial de monomères générés dans le domaine. Cependant cette condition se traduisait souvent par un temps CPU (aussi appelé temps processeur ou temps de calcul) excessivement long. C'est pourquoi, un critère arbitraire a été ajouté pour réduire le temps de calcul : le programme s'achève dès que le nombre d'agrégats dans le système atteint cinq pour mille. Par exemple, pour un nombre initial de mille monomères, le calcul s'arrête quand il reste cinq

agrégats dans le domaine. Pour un nombre initial de dix mille monomères, le calcul se stoppe quand il reste cinquante agrégats dans le domaine.

2.1.2 Suppression du recouvrement non voulu

Aucun contrôle ne permettait de s'assurer du non recouvrement entre les monomères pendant leur génération aléatoire dans le cube virtuel. Un test a donc été ajouté pour vérifier qu'aucun des monomères ne se superpose à l'instant initial. Il consiste à calculer la distance centre à centre entre un monomère et tous les autres, excepté avec lui-même, pour chaque couple de monomères. Si cette distance est plus petite (ou égale pour éviter un contact possible) que la somme des rayons des deux monomères constituant la paire alors ces derniers se chevauchent (ou sont en contact ponctuel). La figure 2.1 met en lumière ce principe de superposition. Dans ce cas, le monomère en cours de génération est réaffecté à une nouvelle position et le test recommence. Cependant, pour éviter que le processus soit infini, un nombre d'échecs à positionner un monomère sans superposition est incrémenté. Si ce nombre est supérieur au nombre initial de monomères (critère arbitraire) alors un message s'affiche à la sortie de compilation pour avertir l'utilisateur qu'il est impossible de générer les monomères sans chevauchement et que le domaine doit être agrandi en diminuant la fraction volumique. Le calcul ne démarre pas. Grâce à cette vérification l'absence de recouvrement dès le départ est assurée et confirmée par le lancement de plusieurs simulations en jouant sur la valeur de la fraction volumique.

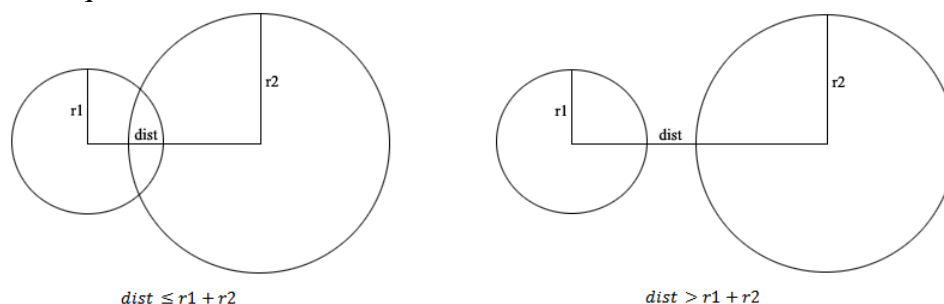


FIG. 2.1 : Illustration du principe de superposition partie 1.

Cette même procédure est utilisée lors de l'agglomération entre deux agrégats et se traduit par la mise en place d'un module intitulé « CalculSuperposition » dans le programme. Son rôle est de s'assurer qu'aucun monomère ne se superpose dans un agrégat en évaluant la distance bord à bord pour chaque couple de monomères. Cette distance se définit comme la distance de contact entre deux monomères, c'est-à-dire la différence entre la distance centre à centre des deux monomères et la somme de leur rayon, normalisée par la somme de leur rayon. Si la valeur de cette distance est strictement négative, c'est-à-dire que la distance centre à centre est strictement plus petite que la somme des rayons, alors les deux monomères se chevauchent. La figure 2.2 met en avant ce principe de superposition.

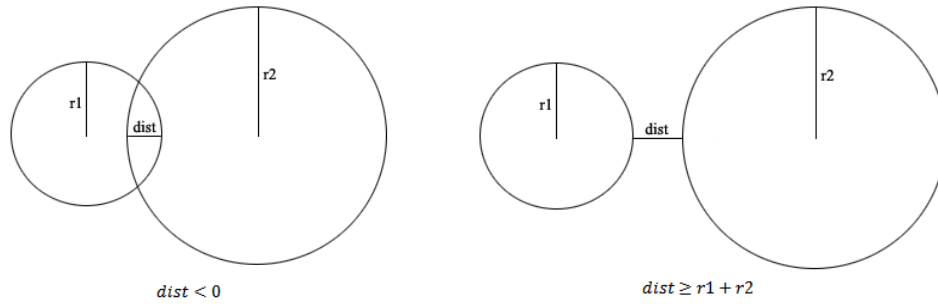


FIG. 2.2 : Illustration du principe de superposition partie 2.

Il est à noter que les valeurs de la distance bord à bord et de la somme des rayons sont comparées à 10^{-6} près pour tenir compte des erreurs d'arrondi numériques. Si du recouvrement est détecté au sein d'un agrégat ou si un monomère d'un agrégat est en superposition avec un monomère d'un autre agrégat alors leur agglomération est interdite. La figure 2.3 illustre ce fait.

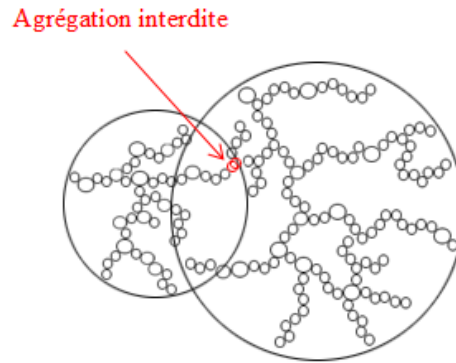


FIG. 2.3 : Illustration du principe de superposition inter-agrégat.

Néanmoins ce second procédé ne suffit pas à supprimer le recouvrement non recommandé car il continue à être décelé. Ce sont donc les conditions aux limites périodiques qui sont à revoir.

2.1.3 Révision des conditions aux limites périodiques

Les conditions aux limites périodiques consistent à réaffecter une nouvelle position à la particule si l'une des coordonnées de son centre de masse sort du domaine mais sans se soucier de la présence ou non d'une particule à l'endroit assigné. La coordonnée impliquée est retranchée de la valeur L , qui correspond à la largeur du domaine, si elle est plus grande que L ou ajoutée de la valeur L si elle est plus petite que zéro.

L'idée ingénieuse mais coûteuse en ressources numériques est de dupliquer le domaine de calcul dans les trois directions de l'espace. Lorsqu'un agrégat courant est sélectionné tous les autres objets sont translatés dans les trois directions de l'espace ce qui permet de prendre en compte tous les contacts inter-agrégats possibles comme montré par la figure 2.4.

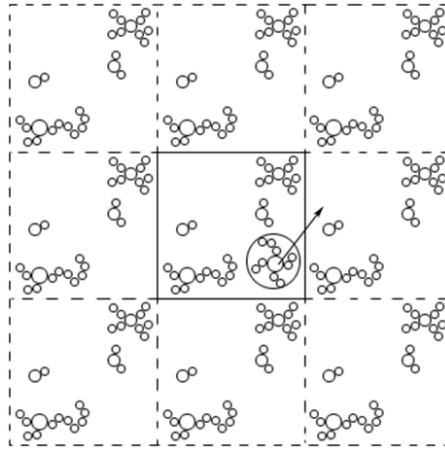


FIG. 2.4 : Principe de fonctionnement des nouvelles conditions aux limites périodiques.

L'agrégat courant peut alors s'agglomérer avec l'image par translation de l'agrégat cible tel qu'affiché sur la figure 2.5. L'agglomérat formé est ensuite replacé dans le domaine principal.

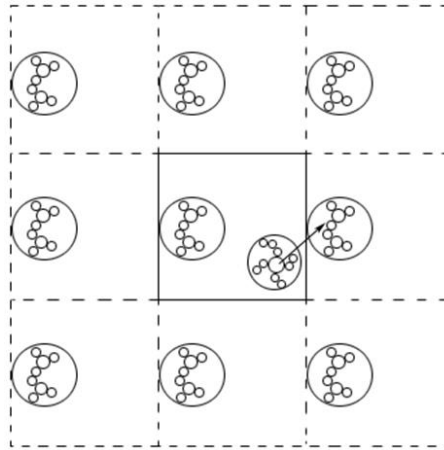


FIG. 2.5 : Prise en compte des contacts inter-agrégats oubliés auparavant.

Les nouvelles conditions aux limites périodiques évitent ainsi tout recouvrement indésirable, prouvé par la figure 2.6. Depuis l'intégration de cette solution plus aucune superposition n'a été recensée.

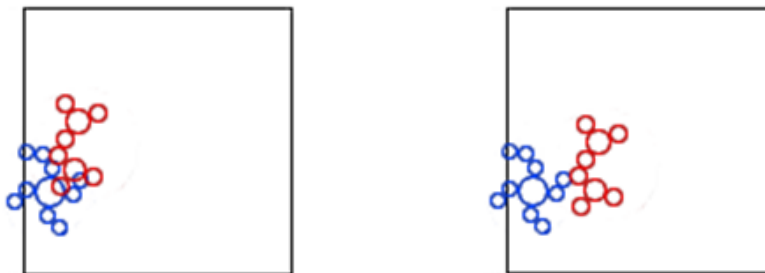


FIG. 2.6 : Anciennes conditions aux limites périodiques (à gauche) versus nouvelles conditions aux limites périodiques (à droite).

Les défauts du programme étant à présent corrigés, l'inspection du modèle physique peut être engagée.

2.2 Implémentation du modèle β

L'étude du modèle β consiste à produire une analyse poussée de son impact sur la dimension fractale d'ensemble (et accessoirement sur le préfacteur fractal d'ensemble) donc sur la morphologie des agrégats générés. Pour cela, la sensibilité du modèle à trois paramètres intervenant dans ce dernier est méticuleusement examinée. Ces trois éléments sont le nombre initial de particules primaires N , le diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires et la fraction volumique f_v du milieu car ces facteurs sont susceptibles d'agir sur la morphologie fractale des agrégats. Le but est de valider le déploiement du modèle.

2.2.1 Présentation du modèle β

En 2015, Yon et al. ont publié un article sur un modèle semi-empirique pour les mesures de la densité effective des agrégats fractals dans lequel ils ont proposé une nouvelle relation plus complexe pour la fonction β car elle fait intervenir les quatre paramètres énoncés au 1.2.5. Elle s'écrit [7] :

$$\beta = \frac{D_g}{D_m} = \frac{C_c(D_p)}{C_c(D_m)} * k_{fe}^{\frac{-1}{d_{fe}}} * N_p^{\frac{1-\Gamma}{d_{fe}}} \quad (2.1)$$

D_g est le diamètre de giration d'un agrégat. D_m est le diamètre de mobilité d'un agrégat. D_p est le diamètre équivalent massique moyen des particules primaires. $C_c(D_p)$ est le facteur correctif de Cunningham pour le diamètre équivalent massique moyen des particules primaires. $C_c(D_m)$ est le facteur correctif de Cunningham pour le diamètre de mobilité d'un agrégat. k_{fe} est le préfacteur fractal d'ensemble. d_{fe} est la dimension fractale d'ensemble. N_p est le nombre de particules primaires contenues dans un agrégat et Γ est la fonction cumulative gaussienne.

$\Gamma = 1,378 * \left[\frac{1}{2} + \frac{1}{2} * \operatorname{erf} \left(\frac{Kn(D_p) + 4,454}{10,628} \right) \right]$ où erf est la fonction erreur, Kn est le nombre de Knudsen et D_p est le diamètre équivalent massique moyen basé sur le diamètre modal $D_{p,modal}$ et sur l'écart-type géométrique σ_p du diamètre modal des particules primaires selon l'équation de conversion de Hatch-Choate [30] :

$$D_p = D_{p,modal} \exp(1,5 \log^2(\sigma_p)) \quad (2.2)$$

Une expression du préfacteur fractal découle du modèle, uniquement valide durant les premiers instants de l'agglomération. En effet, pour une sphérule primaire :

$N_p = 1$, $D_m = D_p$ et $\frac{D_g}{D_p} = \sqrt{\frac{3}{5}}$ (voir 1.2.2 Rayons de giration, de coupure et de mobilité d'un agrégat).

Par conséquent, $\frac{D_g}{D_m} = \frac{D_g}{D_p} = \sqrt{\frac{3}{5}}$ et $\frac{C_c(D_p)}{C_c(D_m)} = \frac{C_c(D_p)}{C_c(D_p)} = 1$.

L'équation (2.1) se réécrit : $\sqrt{\frac{3}{5}} = k_{fe}^{\frac{-1}{d_{fe}}}$. Soit :

$$k_{fe} = \frac{5^{\frac{d_{fe}}{2}}}{3} \quad (2.3)$$

Cette approche est seulement valable tant que la population est constituée majoritairement de monomères seuls. Il est à noter qu'aucune formule théorique, empirique ou semi-empirique n'est véritablement approuvée pour le préfacteur fractal.

2.2.2 Établissement d'une statistique suffisante

L'objectif de cette première étude est de déterminer le nombre initial de particules primaires suffisant pour minimiser le caractère aléatoire des simulations numériques sur la dimension fractale d'ensemble et accessoirement sur le préfacteur fractal d'ensemble. La finalité est de montrer que le modèle est bien responsable de la morphologie des agrégats si la dimension fractale d'ensemble (et accessoirement le préfacteur fractal d'ensemble) change, en écartant toute influence de paramètres externes.

La dimension fractale d'ensemble est imposée dans le modèle égale à $d_{fe} = 1,80$ car c'est une valeur usuellement attendue pour un code DLCA 3D [31]. Le préfacteur fractal d'ensemble est quant à lui imposé dans le modèle par la relation 2.3 déduite de la fonction β , soit égal à $k_{fe} = \frac{5^{\frac{1,80}{2}}}{3} = 1,58$. Les simulations numériques sont lancées avec les conditions initiales reportées dans le tableau 2.1 pour différents nombres initiaux de monomères, à savoir $N = 100, 500, 1\,000, 2\,000, 3\,000, 5\,000$ et $10\,000$. Pour chaque série, le processus est répété dix fois afin d'obtenir une statistique présentant un certain poids.

P (Pa)	T (K)	ρ_p (kg. m ⁻³)	$D_{p,modal}$ (nm)	$\sigma_{p,modal}$ (nm)	f_v (ppm)
101 300	1 700	1 800	36,3	1,25	1 000

TAB. 2.1 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact du nombre initial de particules primaires sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) .

Le couple (d_{fe}, k_{fe}) est obtenu en effectuant une régression linéaire de la représentation log-log du nombre de monomères N_p en fonction du paramètre de taille réduit $\frac{D_g}{D_p}$ pour chaque agrégat rencontré. La valeur de la dimension fractale correspond à la pente de la courbe et le préfacteur fractal correspond à l'ordonnée à l'origine.

Le nombre de particules primaires joue un rôle non négligeable sur la dimension fractale d'ensemble. En effet, cette dernière converge d'autant plus que le nombre initial de monomères est élevé comme le montre la figure 2.7. Cela s'explique par une statistique qui s'effectue sur nombre croissant d'effectifs car plus le nombre d'échantillons est grand plus le résultat est représentatif et fiable. Ce fait est approuvé par l'intervalle de confiance à 95% qui se réduit au fur et à mesure que le nombre initial de particules primaires augmente.

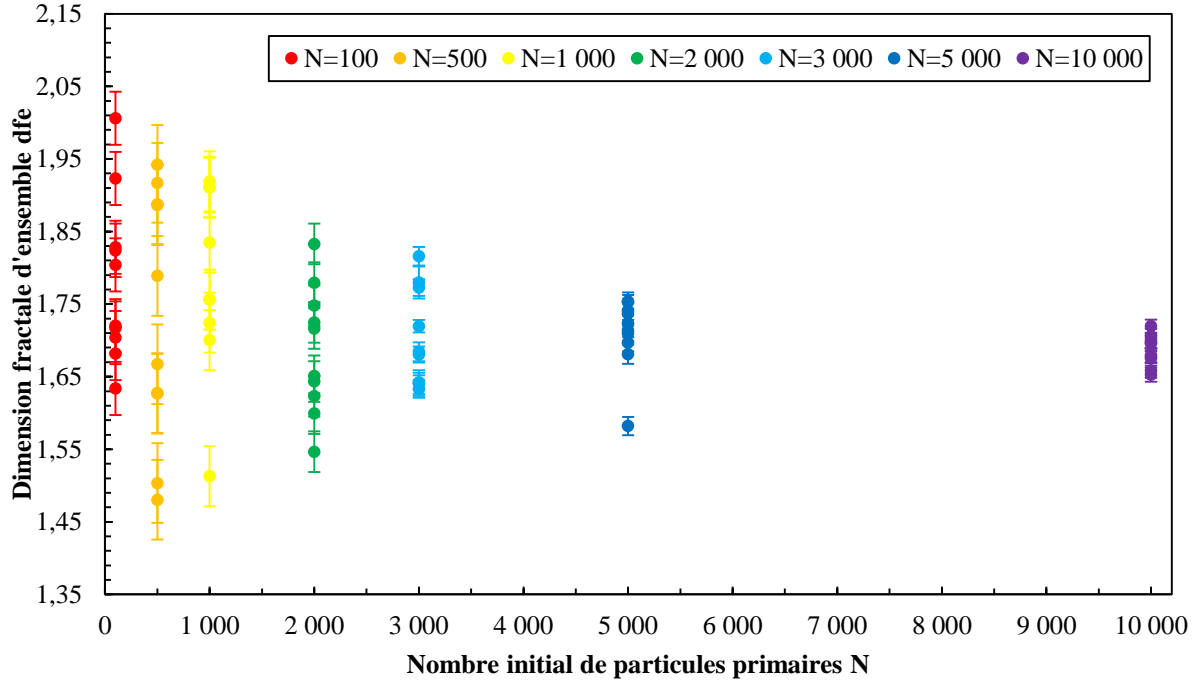


FIG. 2.7 : Influence du nombre initial de monomères N sur la dimension fractale d'ensemble d_{fe} pour chaque cas test. Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur de la dimension fractale d'ensemble.

De même que pour la dimension fractale d'ensemble, le nombre de particules primaires joue également un rôle non négligeable sur le préfacteur fractal d'ensemble. En effet, ce dernier converge tout aussi d'autant plus que le nombre de monomères est élevé comme l'expose la figure 2.8.

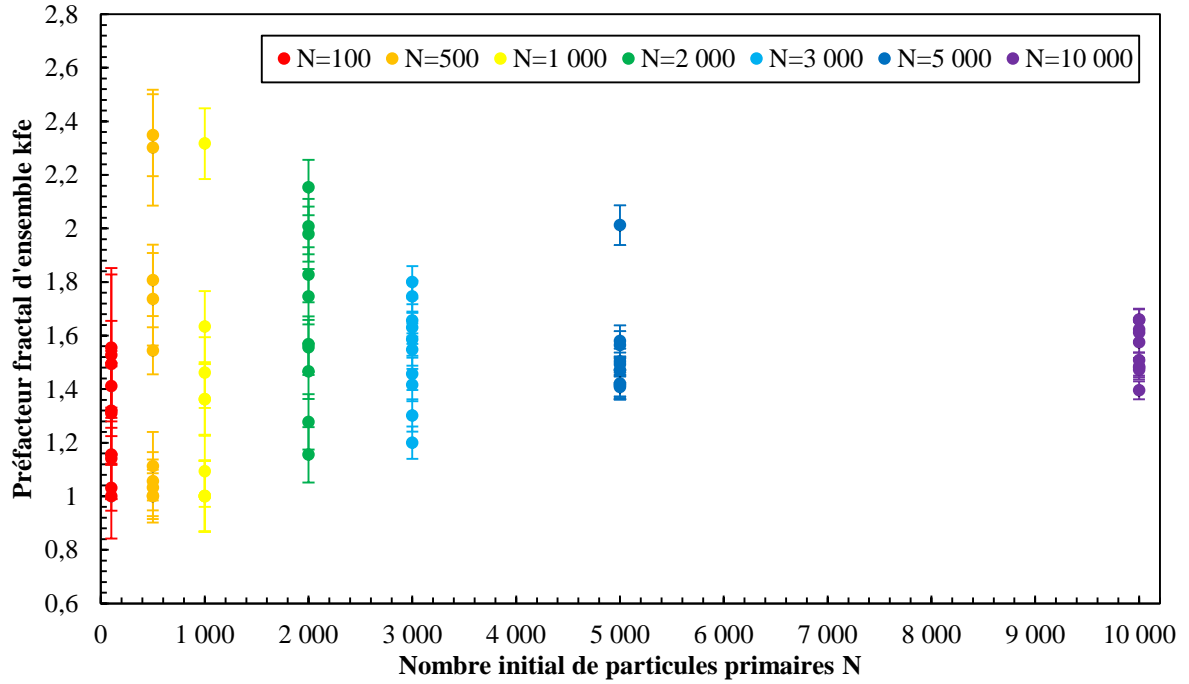


FIG. 2.8 : Influence du nombre initial de monomères N sur le préfacteur fractal d'ensemble k_{fe} pour chaque cas test. Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur du préfacteur fractal d'ensemble.

Au regard des deux graphes précédents, le cas test comportant $N = 10\,000$ monomères est privilégié mais n'est pas celui retenu en raison d'un temps de calcul (aussi appelé temps processeur (CPU)) jugé non raisonnable. La figure 2.9 indique que le temps de calcul augmente considérablement pour un nombre initial de monomères très élevé passant d'une durée de $t = 2s$ pour $N = 100$ monomères à une durée de $t = 03h23min04s$ pour $N = 10\,000$ monomères.

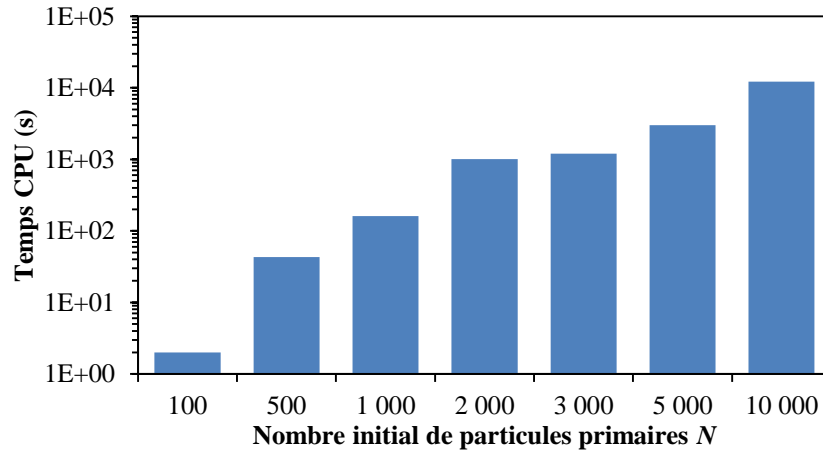


FIG. 2.9 : Évolution du temps *CPU* en fonction du nombre initial de particules primaires N dans le domaine.

Le cas test comportant $N = 5\,000$ monomères offre un très bon compromis entre convergence de la dimension fractale d'ensemble (pareillement pour le préfacteur fractal d'ensemble) et temps CPU. Ce fait est appuyé par la figure 2.10 qui affiche l'intervalle de confiance à 95% de la dimension fractale d'ensemble moyenne et du préfacteur fractal d'ensemble moyen déterminés respectivement pour chaque cas test.

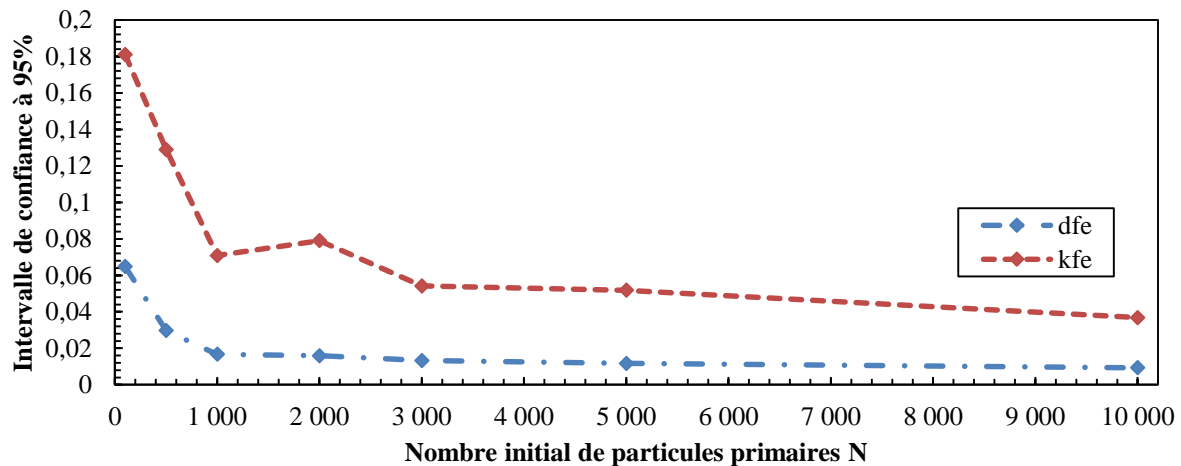


FIG. 2.10 : Intervalle de confiance à 95% de la dimension fractale d'ensemble moyenne et du préfacteur fractal d'ensemble moyen calculés pour chaque série.

L'intervalle de confiance à 95% est très minime entre $N = 5\,000$ monomères et $N = 10\,000$ monomères. En effet, pour la dimension fractale d'ensemble moyenne, l'intervalle de confiance à 95% vaut 0,012 pour $N = 5\,000$ monomères et 0,009 pour $N = 10\,000$ monomères respectivement, soit une différence relative de 0,30 %. Pour le préfacteur fractal d'ensemble, l'intervalle de confiance à 95% vaut 0,052 pour $N = 5\,000$ monomères et 0,037

pour $N = 10\,000$ monomères respectivement, soit une différence relative de 1,50%. Ceci prouve bien que le cas $N = 5\,000$ monomères peut être considéré pour la suite de l'étude et qu'il représente ainsi une statistique suffisante.

Conclusion : Pour la suite de l'étude du modèle β , les simulations numériques seront lancées avec $N = 5\,000$ particules primaires, une dimension fractale d'ensemble moyenne $d_{f_e, moy} = 1,72 \pm 0,01$ et un préfacteur fractal d'ensemble moyen $k_{f_e, moy} = 1,47 \pm 0,05$. Ces moyennes ont été calculées à partir des dix essais du cas test $N = 5\,000$ particules primaires.

2.2.3 Étude de l'influence du diamètre modal des particules primaires

L'objectif de cette deuxième étude est d'examiner l'impact du diamètre modal des particules primaires sur le couple (d_{f_e}, k_{f_e}) . Son influence sur la dynamique temporelle de l'agglomération est également approfondie.

La dimension fractale d'ensemble est imposée dans le modèle égale à $d_{f_e} = 1,72$. Le préfacteur fractal d'ensemble est imposé dans le modèle égal à $k_{f_e} = 1,47$. Les simulations numériques sont lancées avec les conditions initiales reportées dans le tableau 2.2 pour différents diamètres modaux des monomères, à savoir $D_{p, modal} = 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45$ et 50 nm. Pour chaque série, le processus est répété cinq fois avec une approche itérative pour tenter d'obtenir une convergence du couple (d_{f_e}, k_{f_e}) , c'est-à-dire que le calcul est relancé avec le nouveau couple (d_{f_e}, k_{f_e}) déterminé par l'analyse des données à l'issue de la simulation numérique précédente.

N	P (Pa)	T (K)	ρ_p (kg. m ⁻³)	$\sigma_{p, modal}$ (nm)	f_v (ppm)
5 000	101 300	1 700	1 800	1,25	1 000

TAB. 2.2 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact du diamètre modal des particules primaires sur le couple (d_{f_e}, k_{f_e}) et sur la dynamique temporelle d'agglomération.

Impact sur le couple (d_{f_e}, k_{f_e}) :

Le diamètre modal des particules primaires joue un rôle prépondérant sur le couple (d_{f_e}, k_{f_e}) comme en témoigne la figure 2.11 qui représente l'évolution du couple (d_{f_e}, k_{f_e}) en fonction du diamètre modal des monomères. Une nette tendance à la baisse se dégage de la figure 2.11 pour la dimension fractale d'ensemble car pour $D_{p, modal} = 5$ nm la dimension fractale d'ensemble obtenue est $d_{f_e, moy} \simeq 1,82 \pm 0,01$ et pour $D_{p, modal} = 50$ nm la dimension fractale d'ensemble obtenue est $d_{f_e, moy} \simeq 1,66 \pm 0,01$. Une dimension fractale d'ensemble forte signifie que les agrégats formés sont plus compacts. Au contraire, une dimension fractale d'ensemble faible signifie que les agrégats formés sont beaucoup moins compacts et présentent une structure ramifiée. Les particules primaires ayant un petit diamètre modal sont plus mobiles car elles sont légères et possèdent donc un grand libre parcours moyen. Leur trajectoire est donc de nature balistique. L'agrégation tend alors vers le mode balistique ce qui est confirmé par la figure 2.14. Les particules primaires ayant un grand diamètre modal sont, quant à elles, moins mobiles car elles sont plus lourdes et possèdent donc un petit libre

parcours moyen. Leur trajectoire est donc de nature diffusionnelle. L'agrégation tend alors vers le mode diffusionnel ce qui est confirmé par la figure 2.14. Tout ceci est ainsi cohérent avec les résultats observés sur la figure 2.11. Quant au préfacteur fractal d'ensemble, une tendance à la hausse se dégage de la figure 2.11. En effet, il croît d'abord fortement lors du passage de $D_{p,modal} = 5 \text{ nm}$ à $D_{p,modal} = 10 \text{ nm}$ avec respectivement $k_{fe,moy} \approx 1,38 \pm 0,05$ et $k_{fe,moy} \approx 1,52 \pm 0,06$ puis légèrement pour semble-t-il atteindre un plateau pour les plus grandes valeurs du diamètre modal des monomères car à partir de $D_{p,modal} = 45 \text{ nm}$ $k_{fe,moy} \approx 1,62 \pm 0,05$.

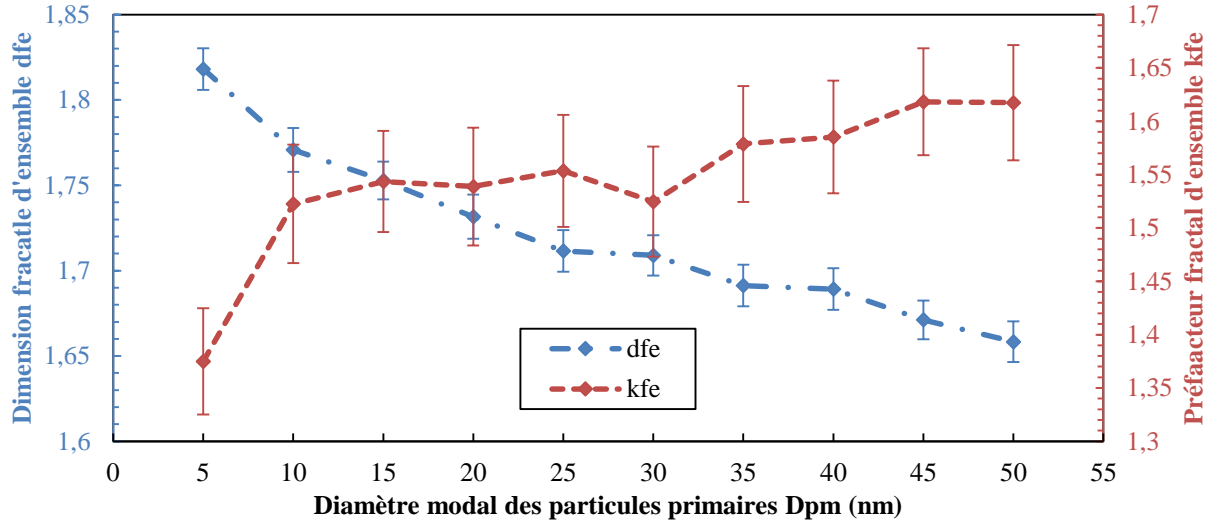


FIG. 2.11 : Influence du diamètre modal des particules primaires $D_{p,modal}$ sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur du couple (d_{fe}, k_{fe}) .

Conclusion : La fonction β est très sensible au diamètre modal des particules primaires. Le modèle est responsable de la morphologie des agrégats car il est capable de produire des agrégats plus ou moins compacts en fonction du diamètre modal des monomères. Une diminution du diamètre modal entraîne la formation d'agrégats plus compacts tandis qu'une augmentation du diamètre modal engendre des agrégats moins compacts.

Impact sur la dynamique temporelle de l'agglomération :

Le diamètre modal des particules primaires joue un rôle majeur sur la cinétique d'agglomération des particules. La figure 2.12 représente l'évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour les différents diamètres modaux des particules primaires étudiés. Aux petits instants de l'agglomération, c'est l'approche de la coalescence qui prévaut car l'inverse du nombre d'agrégats est une fonction affine du temps quelle que soit la valeur du diamètre modal (voir figure 2.12). En effet, toutes les courbes suivent la théorie de la coalescence qui est matérialisée par une droite de pente $z = 1$. Cela est donc conforme avec la théorie de la cinétique d'agglomération (voir 1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules). Aux grands instants de l'agglomération, l'inverse du nombre d'agrégats est proportionnel au temps à la puissance z (voir figure 2.12). En effet, toutes les courbes dévient de la théorie de la coalescence. Cela en adéquation avec la théorie

de la cinétique d'agglomération (voir 1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules).

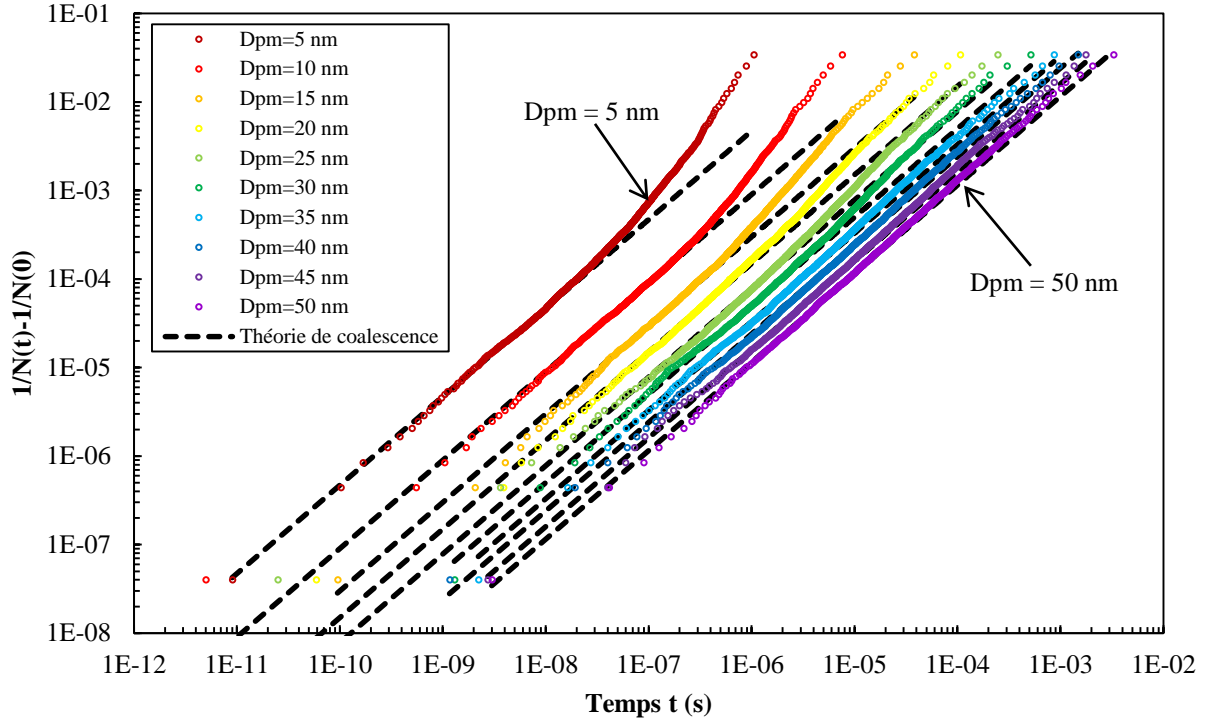


FIG. 2.12 : Évolution temporelle du nombre d'agrégats dans le domaine pour le diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires variable.

L'exposant cinétique z est déterminé pour chaque cas test aux petits et grands instants de l'agglomération par le fit de la portion correspondante de la courbe avec une loi de puissance. Les résultats obtenus apparaissent sur la figure 2.13 qui représente l'évolution de l'exposant cinétique en fonction du diamètre modal des particules primaires.

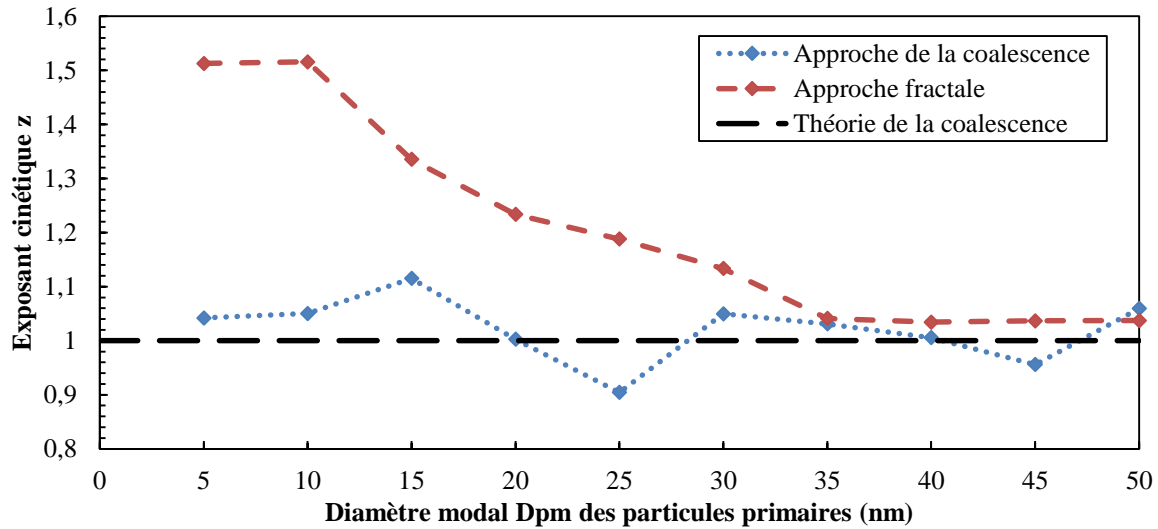


FIG. 2.13 : Exposant cinétique z pour les différentes valeurs du diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires.

En analysant la figure 2.13, l'approche de la coalescence aux petits instants semble assez bien respectée dans l'ensemble avec un exposant cinétique peu éloigné de $z = 1$. Pour les temps les plus grands, l'exposant cinétique croît avec la décroissance du diamètre modal des

particules. En effet, pour les particules les plus petites le mode d'agrégation balistique est privilégié (voir figure 2.14). Pour rappel, le régime balistique se traduit par un exposant cinétique proche de $z = 2$ (voir 1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules). Le régime d'écoulement tend donc vers le régime balistique pour les petites particules. Inversement, l'exposant cinétique décroît avec la croissance du diamètre modal des particules. En effet, pour les particules les plus grandes le mode d'agrégation diffusionnel est privilégié (voir figure 2.14). Pour rappel, le régime continu se traduit par un exposant cinétique de l'ordre de $z = 1$ (voir 1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules). Le régime d'écoulement tend donc vers le régime continu pour les grosses particules.

Le rapport $\frac{l_{pm}}{dist}$ est tracé en fonction du nombre de Knudsen Kn pour représenter les régimes d'écoulement et la nature de l'agrégation sur la figure 2.14.

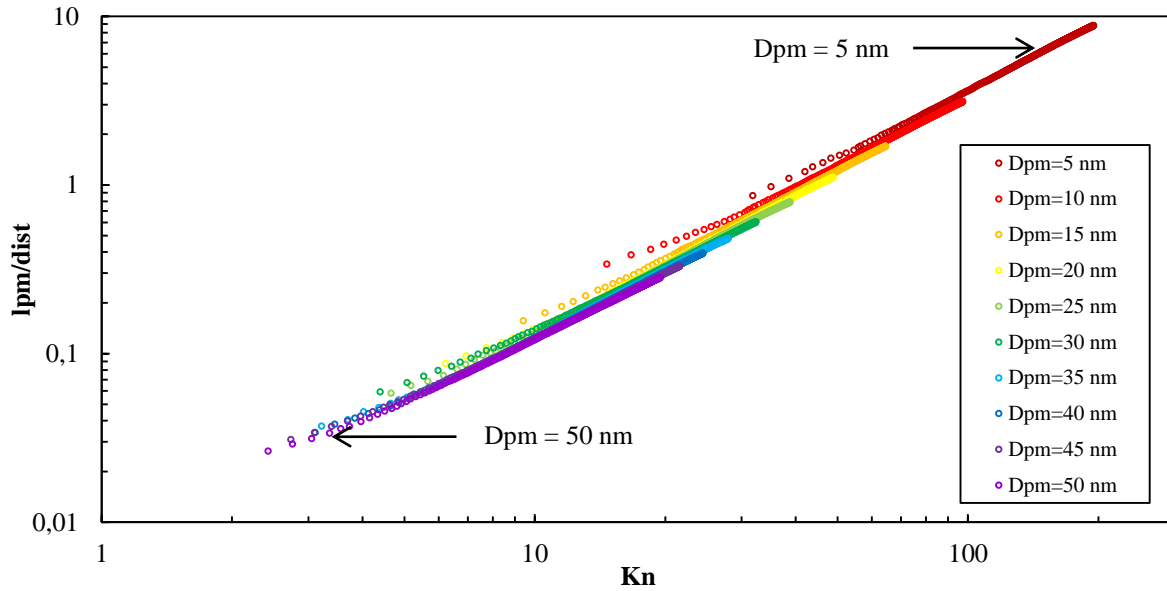


FIG. 2.14 : Évolution temporelle du régime d'écoulement et du mode d'agrégation pour le diamètre modal $D_{p,modal}$ des particules primaires variable.

Une première constatation peut être faite à propos du mode d'agrégation. Pour un petit diamètre modal la valeur du rapport $\frac{l_{pm}}{dist}$ est grande ce qui informe de la nature balistique de l'agrégation. Par exemple, pour $D_{p,modal} = 5 \text{ nm}$ le libre parcours moyen est environ dix fois supérieur à la distance inter-particulaire au début de l'agrégation (voir figure 2.14). Les collisions sont de nature balistique. Pour un grand diamètre modal la valeur du rapport $\frac{l_{pm}}{dist}$ est petite ce qui informe de la nature diffusionnelle de l'agrégation. Par exemple, pour $D_{p,modal} = 50 \text{ nm}$ le libre parcours moyen est environ 0,3 fois inférieur à la distance inter-particulaire au début de l'agrégation (voir figure 2.14). Les collisions sont de nature diffusionnelle. Une seconde constatation peut être faite à propos du régime d'écoulement. Le diamètre modal ne joue un rôle que sur l'amplitude de la variation du nombre de Knudsen. En effet, quelle que soit la valeur du diamètre modal imposée, les particules sont d'abord en régime moléculaire libre aux petits instants de l'agglomération ($Kn \gg 1$) ce qui est normal

puisque leur diamètre est inférieur au libre parcours moyen des molécules du gaz porteur. Elles grossissent ensuite par agglomération et changent de régime en cours d'agrégation : elles sont en régime transitoire. Pour les temps les plus grands et pour un grand diamètre modal (par exemple, pour $D_{p,modal} = 50 \text{ nm}$) le régime d'écoulement tend vers le régime continu ($Kn \ll 1$).

Conclusion : Le diamètre modal des particules agit sur le mode d'agrégation et le régime d'écoulement. Une diminution du diamètre modal favorise une agrégation balistique tandis qu'une augmentation du diamètre modal avantage une agrégation diffusionnelle et un régime d'écoulement tendant vers le régime continu.

2.2.4 Étude de l'influence de la fraction volumique du milieu

L'objectif de cette troisième étude est d'explorer l'importance de la fraction volumique du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) ainsi que sur la dynamique temporelle de l'agglomération car la fraction de volume influe sur les distances inter-particulaires.

La démarche est identique à celle mise en place pour l'étude de l'influence du diamètre modal des monomères sauf qu'ici, les simulations numériques sont lancées avec les conditions initiales reportées dans le tableau 2.3 pour différentes fractions volumiques, à savoir $f_v = 1, 10, 100, 1\ 000, 5\ 000, 10\ 000, 20\ 000, 30\ 000, 50\ 000, 70\ 000, 90\ 000$ et $100\ 000$ ppm.

N	P (Pa)	T (K)	ρ_p (kg. m ⁻³)	$D_{p,modal}$ (nm)	$\sigma_{p,modal}$ (nm)
5 000	101 300	1 700	1 800	10,0	1,25

TAB. 2.3 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la fraction volumique f_v du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle d'agglomération.

Impact sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) :

La fraction de volume f_v du milieu joue un rôle prépondérant sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) comme montré par la figure 2.15 qui représente l'évolution du couple (d_{fe}, k_{fe}) en fonction de la fraction de volume du milieu.

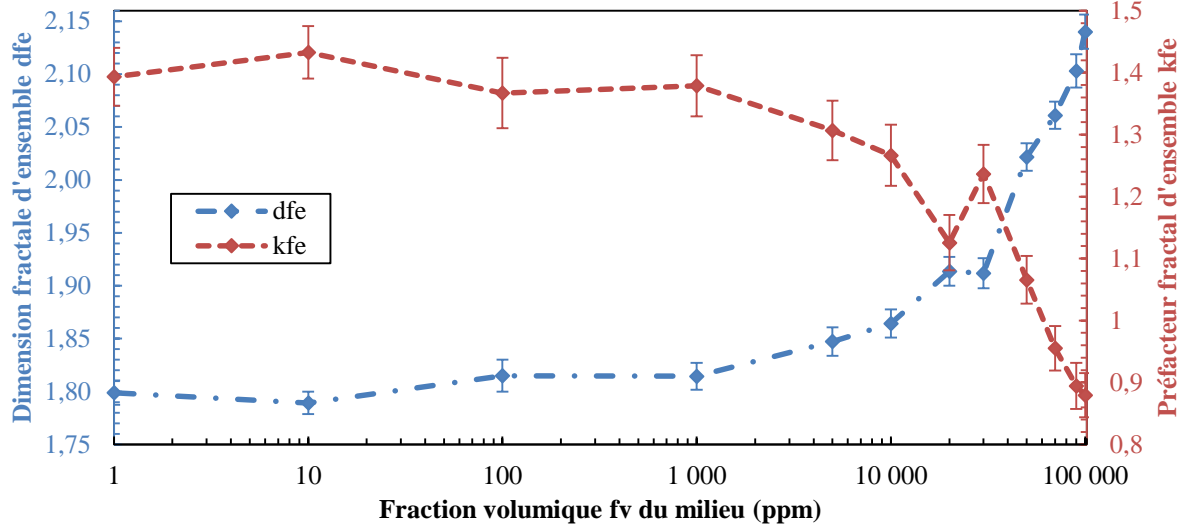


FIG. 2.15 : Influence de la fraction volumique f_v du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95% pour chaque valeur du couple (d_{fe}, k_{fe}) .

En effet, pour les plus fortes valeurs de f_v simulant un milieu dense, la dimension fractale d'ensemble s'envole littéralement et atteint une valeur de $d_{fe, moy} = 2,14 \pm 0,02$ pour $f_v = 100\,000\,ppm$ (voir figure 2.15). Une dimension fractale d'ensemble élevée signifie que les agrégats générés sont compacts. Cela s'explique par la forte densité du milieu qui force le mode d'agrégation balistique car, dans ce cas, le libre parcours moyen des particules est très grand devant la distance inter-particulaire. Les collisions sont alors de nature balistique. Pour les faibles valeurs de f_v simulant un milieu dilué, la dimension fractale d'ensemble tend vers la valeur communément observée pour un code DLCA 3D pour un système dilué (voir figure 2.15), à savoir $d_{fe} = 1,8$ [31]. Les agrégats générés sont peu compacts et possèdent une structure plus ramifiée. Cela s'explique par le fait que la faible densité du milieu favorise plutôt un mode d'agrégation diffusionnel car, dans ce cas, la distance inter-particulaire est grande devant le libre parcours moyen des particules. Les collisions sont alors de nature diffusionnelle.

Quant au préfacteur fractal d'ensemble il suit la tendance inverse de la dimension fractale d'ensemble.

Par ailleurs, en traçant l'évolution du préfacteur fractal d'ensemble k_{fe} en fonction de la dimension fractale d'ensemble d_{fe} tel que mis en valeur par la figure 2.16 ci-dessous, une loi d'évolution du préfacteur fractal peut être déduite du fit de la courbe obtenue par une loi de puissance. La figure 2.16 fait apparaître les résultats extraits du code DLCA et ceux issus de l'étude menée en 2009 par Ehrl et al. [32] sur la génération et l'analyse géométrique des agrégats denses sur une gamme de dimensions fractales comprises entre 2,2 et 3,0.

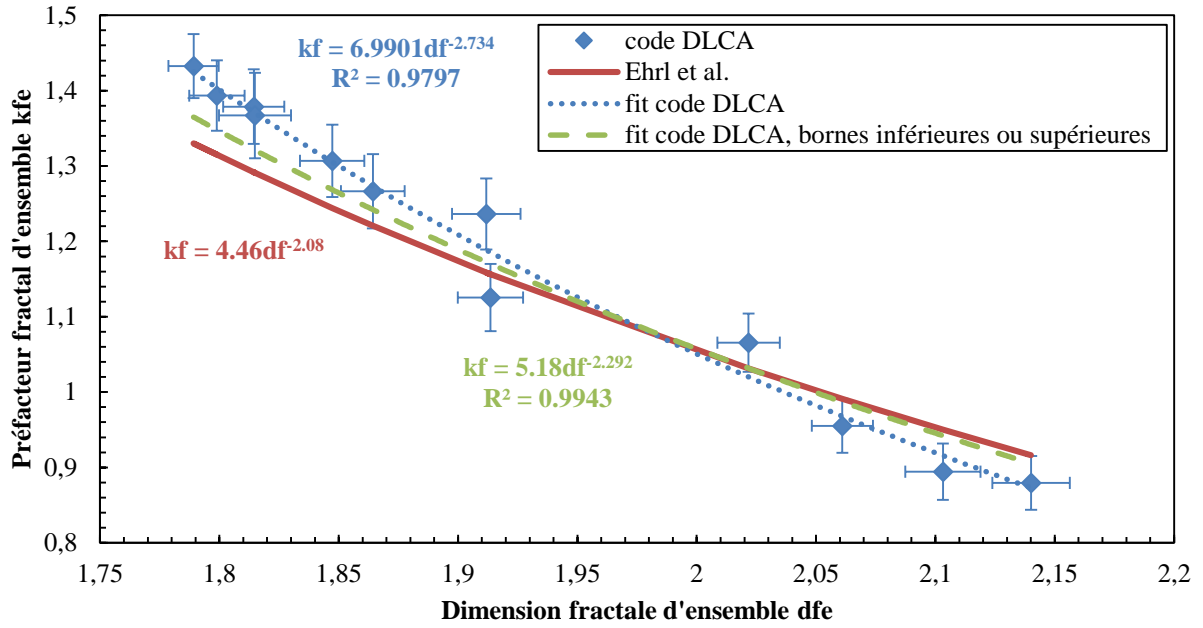


FIG. 2.16 : Évolution du préfacteur fractal d'ensemble k_{fe} en fonction de la dimension fractale d'ensemble d_{fe} . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%.

Par rapport à la solution de Ehrl et al., le code DLCA semble surestimer les valeurs du préfacteur fractal pour des valeurs de la dimension fractale relativement faibles mais semble sous-estimer les valeurs du préfacteur fractal d'ensemble pour des valeurs de dimension fractale d'ensemble élevées. À remarquer toutefois que le fit des bornes inférieures du préfacteur fractal d'ensemble pour la partie haute de la courbe et des bornes supérieures pour la partie basse de la courbe, représenté par la courbe en pointillés verte (voir figure 2.15) se superpose quasiment à la courbe de Ehrl et al.

La loi de puissance déterminée par le fit du code DLCA (courbe en pointillés bleue sur la figure 2.16) est :

$$k_{fe} = 6,9901d_{fe}^{-2,734} \quad (2.4)$$

La loi de puissance déterminée par le fit du code DLCA des bornes supérieures ou inférieures du préfacteur fractal d'ensemble (courbe en pointillés verte sur la figure 2.16) est :

$$k_{fe} = 5,18d_{fe}^{-2,292} \quad (2.5)$$

Ces deux lois de puissance peuvent être comparées à celle proposée par Ehrl et al. [32] :

$$k_{fe} = 4,46d_{fe}^{-2,08} \quad (2.6)$$

La loi déterminée par le fit du code DLCA diffère sensiblement de celle présentée par Ehrl et al. Premièrement, le coefficient de corrélation R obtenu est mauvais car $R^2 = 0,9797$ (voir figure 2.16) ce qui peut, en partie, expliquer l'écart notable constaté. Deuxièmement, le contexte de l'étude n'est pas le même car l'intervalle des dimensions fractales est distinct : $[1,79 \pm 0,01; 2,14 \pm 0,02]$ pour le code DLCA, $[2,2; 3,0]$ pour Ehrl et al. Troisièmement, les agrégats générés par le code DLCA sont des agrégats polydispersés en taille de monomères

tandis que ceux produits par le code DLCA de Ehrl et al. sont monodispersés en taille de monomères.

La loi de puissance déterminée par le second fit du code DLCA se rapproche nettement de celle de Ehrl et al. D'ailleurs, le coefficient de corrélation R est indéniablement meilleur que le précédent car $R^2 = 0,9943$ ce qui montre une meilleure corrélation entre les valeurs. La loi de puissance établie par Ehrl et al. est en accord avec la littérature [32] ce qui montre que les dimensions et préfacteurs fractals produites par le code DLCA ne sont pas aberrantes. Le code DLCA est donc un code solide.

Conclusion : La fonction β est très sensible à la fraction de volume du milieu. Le modèle est responsable de la morphologie des agrégats car il est capable de générer des agrégats plus ou moins compacts en fonction de la fraction volumique.

La figure 2.17 affiche l'histogramme du temps de calcul CPU en fonction de la fraction de volume du milieu. Pour des fractions volumiques fortes simulant un milieu dense, le domaine de calcul est restreint. Le temps de calcul est alors très court (de l'ordre de 11-12 minutes à partir de $f_v = 10^4$ ppm) car la fraction volumique force l'agrégation des particules avec des distances inter-particulaires très petites. En revanche, pour une fraction volumique faible simulant un milieu dilué, le domaine de calcul est très large. Par conséquent, le temps de calcul est très long et s'envole littéralement. Par exemple, le temps CPU est proche de 70 heures pour $f_v = 1$ ppm, soit quasiment trois jours de calculs.

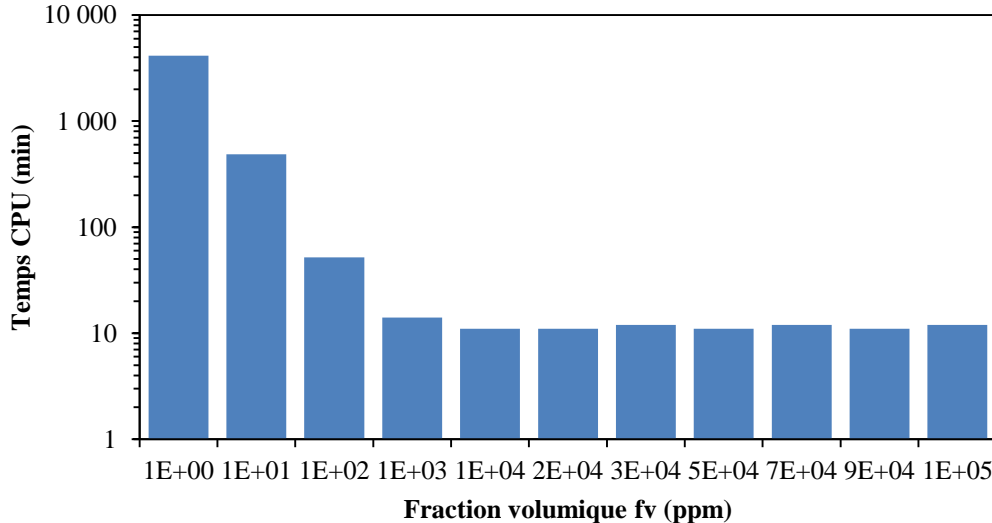


FIG. 2.17 : Évolution du temps CPU en fonction de la fraction volumique f_v du milieu.

Ce temps de calcul excessivement long est assez gênant pour obtenir des résultats rapides car, pour simuler une flamme réelle, la fraction de volume attendue est de l'ordre de 1 ppb (partie par milliard) soit 10^{-3} ppm (partie par million). En extrapolant, le temps de calcul pourrait être de plusieurs semaines. Plusieurs pistes seraient à envisager pour réduire au mieux ce temps de calcul comme implémenter dans le code DLCA la gestion du multithread, c'est-à-dire la répartition des tâches sur plusieurs cœurs d'un processeur, ou subdiviser le domaine de

calcul en plusieurs domaines plus petits et là aussi envisager le multithread où chaque cœur s'occuperait d'un petit domaine de calcul.

Impact sur la dynamique temporelle d'agglomération :

La fraction volumique joue un rôle prédominant sur la cinétique d'agglomération des particules. La figure 2.18 représente l'évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour les différentes fractions volumiques étudiées. L'analyse de la figure 2.18 est exactement la même que celle faite pour le diamètre modal des particules primaires (voir 2.2.3 Étude de l'influence du diamètre modal des particules primaires).

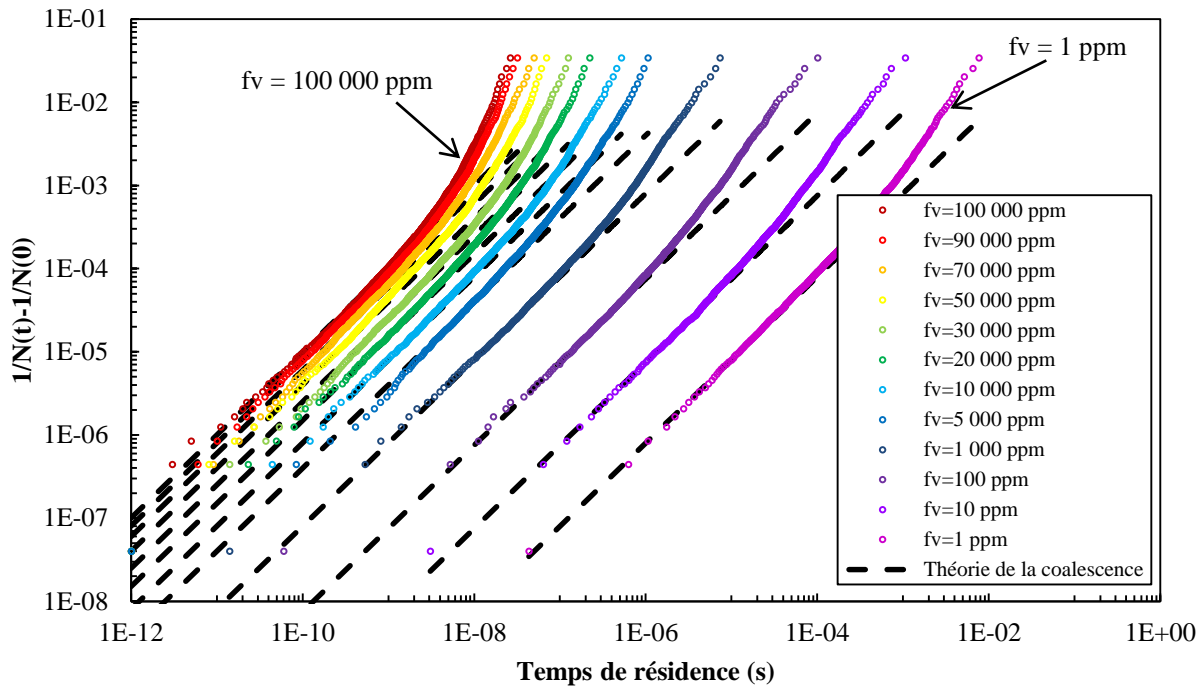


FIG. 2.18 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différentes fractions volumiques allant d'un milieu très dilué ($f_v = 1 \text{ ppm}$) à un milieu très dense ($f_v = 10^5 \text{ ppm}$).

L'exposant cinétique z de chaque cas est reporté sur la figure 2.19, préalablement déterminé par la même méthode employée pour l'étude des diamètres modaux des particules primaires.

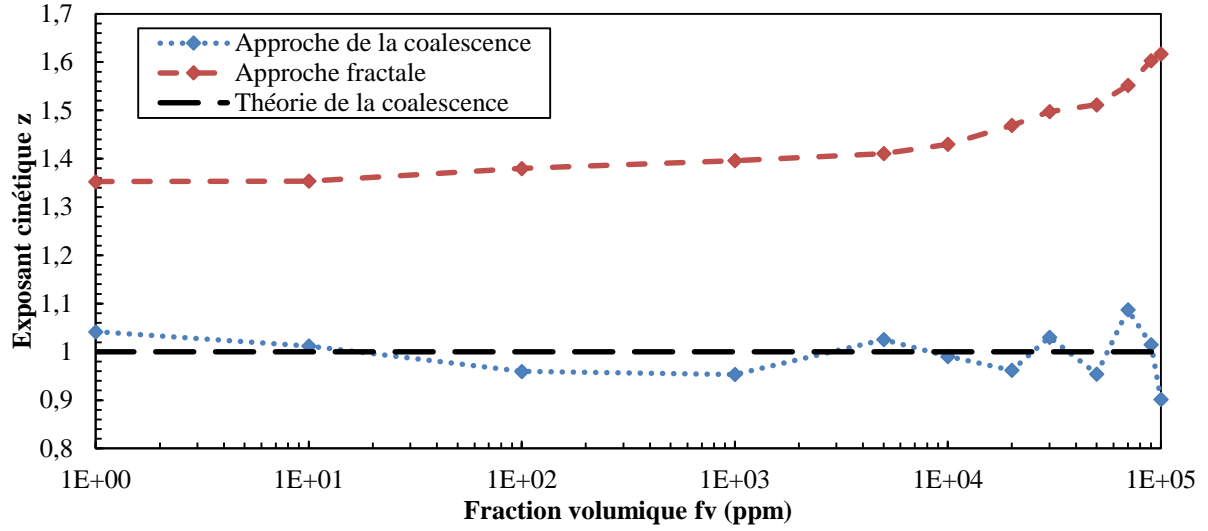


FIG. 2.19 : Exposant cinétique z pour différentes fractions volumiques allant d'un milieu très dilué ($f_v = 1 \text{ ppm}$) à un milieu très dense ($f_v = 10^5 \text{ ppm}$).

En analysant la figure 2.19, l'approche de la coalescence est respectée aux petits instants de l'agglomération car dans l'ensemble l'exposant cinétique est voisin de $z = 1$. Aux grands instants de l'agglomération, l'approche fractale est valide. L'exposant cinétique croît avec l'augmentation de la fraction volumique car un milieu de plus en plus dense favorise l'agrégation balistique.

Le rapport $\frac{l_{pm}}{dist}$ est tracé en fonction du nombre de Knudsen Kn pour représenter les régimes d'écoulement et le mode d'agrégation sur la figure 2.20.

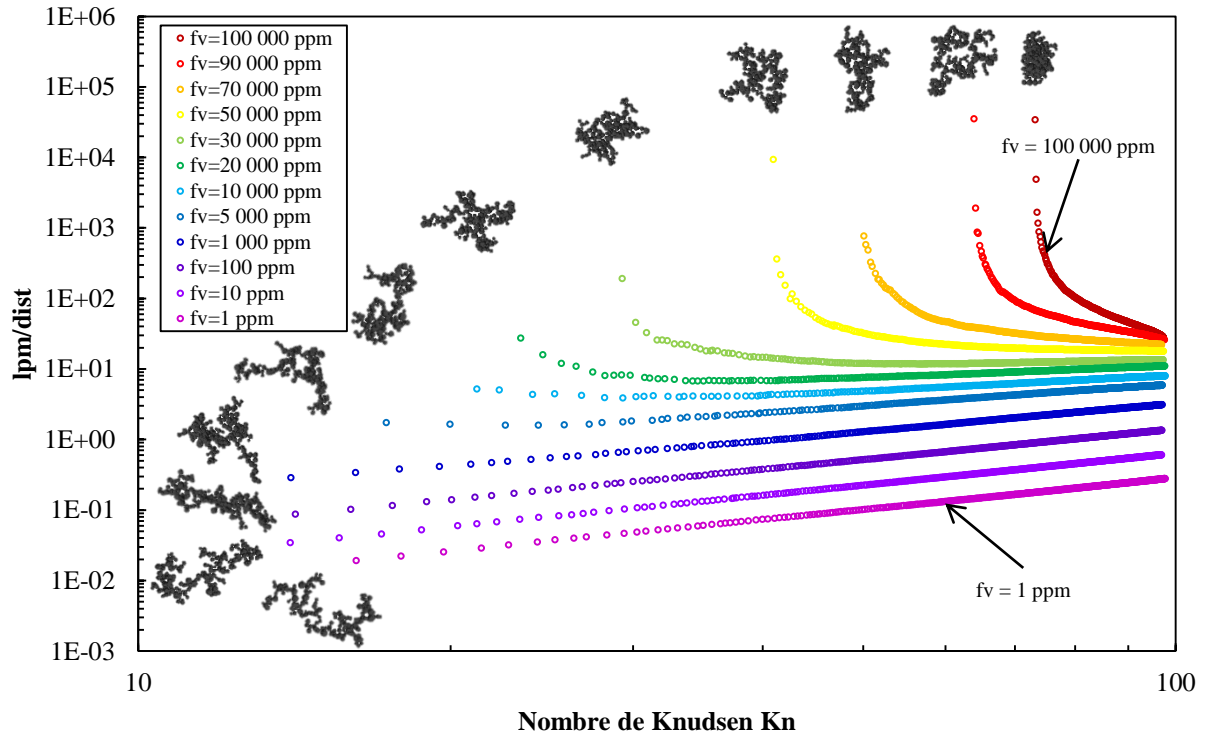


FIG. 2.20 : Évolution temporelle du régime d'écoulement et du mode d'agrégation pour différentes fractions volumiques allant d'un milieu très dilué ($f_v = 1 \text{ ppm}$) à un milieu très dense ($f_v = 10^5 \text{ ppm}$). Les agrégats de suie sont constitués de $N_p = 200 \pm 7$ monomères. Le facteur d'échelle est le même pour tous les agrégats.

La fraction volumique joue un rôle prépondérant sur le régime d'écoulement et le mode d'agrégation. En effet, pour les plus fortes fractions volumiques, l'agrégation est clairement balistique car la distance inter-particulaire est très petite devant le libre parcours moyen des particules causée par un milieu dense. Les collisions sont de nature balistique. Au contraire, pour les plus faibles fractions volumiques, l'agrégation est diffusionnelle car la distance inter-particulaire est grande devant le libre parcours moyen des particules causée par un milieu dilué. Les collisions sont de nature diffusionnel. À propos du régime d'écoulement, pour les plus fortes fractions volumiques, l'écoulement reste en régime moléculaire libre ce qui signifie que les agrégats formés sont de petites tailles révélant une structure dense. Pour les plus faibles fractions volumiques, une transition de régime d'écoulement s'opère pour tendre vers le régime continu ce qui signifie que les agrégats formés sont de grandes tailles ce qui montre que leur structure est moins dense et plus dispersée. D'ailleurs, les images des agrégats reportées sur la figure 2.20 justifient ce point.

Conclusion : La fraction de volume impacte le régime d'écoulement et le mode d'agrégation. La diminution de la fraction de volume du milieu conduit à un régime continu certain et à un mode d'agrégation diffusionnel flagrant. L'augmentation de la fraction de volume du milieu conduit à un régime moléculaire libre évident et à un mode d'agrégation balistique très marqué.

2.3 Étude de l'influence de la température du milieu

L'objectif de cette dernière étude est d'analyser l'effet de la température du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) ainsi que sur la dynamique temporelle de l'agglomération pour montrer l'importance des conditions thermodynamiques appliquées. Le détail de cette investigation est présenté en annexe 3. Les principaux résultats sont résumés ci-dessous.

La température a une influence sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) donc sur la morphologie des agrégats mais de manière moindre que les effets de la variation du diamètre modal des particules primaires et de la variation de la fraction de volume du milieu. Une diminution de la température a plutôt tendance à former des agrégats moins compacts car elle favorise l'agrégation diffusionnelle tandis qu'une augmentation de la température a plutôt tendance à former des agrégats plus compacts car elle favorise l'agrégation balistique. L'examen de ce paramètre thermodynamique prouve que les conditions thermodynamiques du gaz porteur agissent sur la morphologie des agrégats. Des conditions thermodynamiques plus physiques sont donc à prendre en compte pour générer des agrégats présentant des morphologies plus réalistes.

2.4 Validation du modèle β

La fonction β proposée par Yon et al. est bien une fonction croissante de la taille des particules. Elle prédit bien un ratio $\frac{D_g}{D_m}$ constant quand le nombre de particules primaires dans

un agrégat est grand. En revanche, le modèle semble sous-estimer le ratio $\frac{D_g}{D_m}$ quand le nombre de sphérules primaires est très petit. Pour rappel, le ratio $\frac{D_g}{D_m}$ est égal à 0,77 pour un nombre de sphérules primaires égal à l'unité.

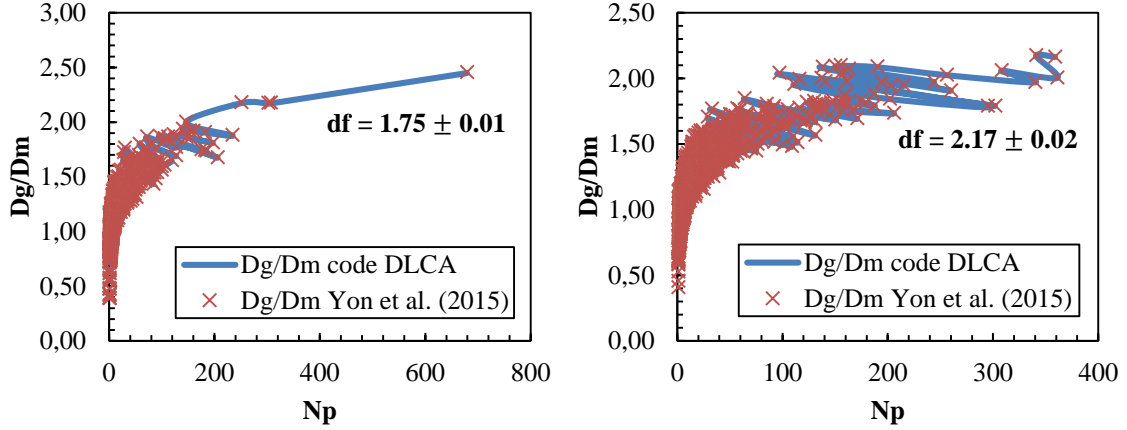


FIG. 2.21 : Évolution du rapport entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité en fonction du nombre de particules primaires N_p contenues dans un agrégat pour $D_{p,modal} = 5 \text{ nm}$ (à gauche) et pour $D_{p,modal} = 50 \text{ nm}$ (à droite).

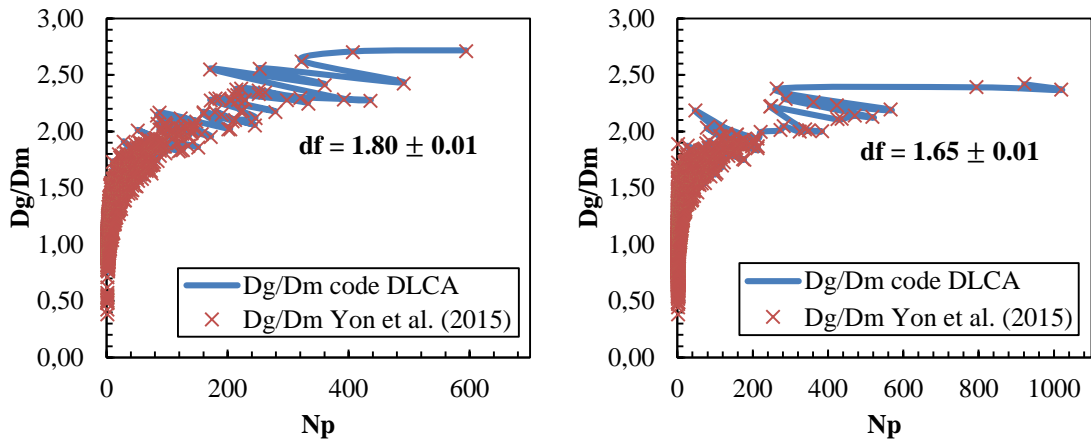


FIG. 2.22 : Évolution du rapport entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité en fonction du nombre de particules primaires N_p contenues dans un agrégat pour $f_v = 1 \text{ ppm}$ (à gauche) et pour $f_v = 10^5 \text{ ppm}$ (à droite).

Conclusion :

La fonction β est capable de créer une grande variabilité du couple (d_{fe}, k_{fe}) . Il est très sensible aux quatre paramètres $(N_p, D_{p,modal}, Kn, d_{fe})$ énoncés au 1.2.5. Avec l'intégration de ce modèle dans le programme, le code DLCA génère des agrégats présentant des morphologies variables donc plus réalistes. La mise en place du modèle est validée.

Chapitre 3 : Mise en œuvre du code DLCA avec le recouvrement des monomères

Ce chapitre explique la procédure élaborée pour tenir compte du recouvrement des monomères dans le code DLCA avec l'intégration d'une loi de croissance de surface physique

et la réévaluation des paramètres physiques (volume, surface libre, masse, centre de masse et rayon de giration) des agrégats. Une étude est menée pour mesurer l'impact de cette nouvelle modélisation sur la morphologie des agrégats et sur la dynamique temporelle de l'agglomération.

3.1 Introduction

Le code DLCA actuel ne modélise pas la croissance de surface des monomères au cours du temps. Or cette modélisation physique constitue une étape essentielle dans la conception d'agrégats à la morphologie réaliste. En effet, elle permet de simuler les réactions chimiques qui se produisent à la surface des particules de suie et par conséquent, les dépôts de matière qui augmentent leur taille au cours du temps. L'espèce chimique responsable de la croissance de surface des particules est généralement l'acétylène C_2H_2 . La croissance de surface des monomères apporte un grand nombre de modifications tant d'un point de vue numérique que d'un point de vue physique. Elle amène surtout l'un des éléments clés qui sont acteurs de la morphologie réaliste d'un agrégat : c'est le paramètre de recouvrement ou « overlapping » pour les anglophones. D'un point de vue physique, la croissance de surface nécessite de définir une loi de croissance physique. L'apparition du recouvrement entraîne un changement dans le volume (et la surface libre) d'un agrégat qui doit maintenant être pris en compte pour éviter une surestimation de sa masse (et de sa surface réelle). Par conséquent, les paramètres physiques qui dépendent de la masse d'un agrégat doivent être réévalués : ce sont la masse elle-même, le centre de masse et le rayon de giration. Au niveau numérique, ce facteur de recouvrement importe forcément une nouvelle manière de calculer le volume, la surface, la masse, le centre de masse, le rayon de giration mais aussi l'introduction de deux paramètres caractéristiques de la morphologie des agrégats, à savoir le nombre de coordination et le coefficient de recouvrement.

Avant d'implémenter toutes ces nouveautés dans le programme, une étude théorique doit être réalisée sur la loi de croissance et les éléments énoncés ci-dessus pour déterminer leur expression théorique.

3.2 Étude théorique

3.2.1 Loi de croissance de surface des monomères

Dans un premier temps, la loi de croissance de surface des monomères choisie est la plus simple possible qui puisse exister. La variation du rayon des monomères au cours du temps est proportionnelle à une constante, c'est-à-dire que la croissance de surface est linéaire dans le temps.

Soit $\frac{dR_p}{dt} = A$ où R_p est le rayon d'une particule primaire et A est une constante à déterminer.

$$\int_{R_p(t)}^{R_p(t+dt)} dR_p = A \int_t^{t+dt} dt$$

$$R_p(t + dt) = R_p(t) + A dt$$

$$R_p(t + dt) = R_p(t) + A dt \tag{3.1}$$

A est une constante fixée arbitrairement par l'utilisateur et déterminée par une analyse post-traitement, t est le temps, dt est le pas de temps, $R_p(t + dt)$ est le rayon d'un monomère à l'instant $t + dt$ et $R_p(t)$ est le rayon d'un monomère à l'instant t . Ce premier modèle de la croissance de surface des particules primaires sert de cas test pour observer le comportement du code DLCA.

Dans un second temps, le modèle de la croissance de surface employé est celui d'Al Zaitone et al. [28] qui semble être le plus abouti à ce jour. Ces auteurs supposent que la croissance de surface est proportionnelle à la surface libre des monomères et représente le dépôt d'une nouvelle masse sur leur surface par les réactions chimiques. Elle est modélisée par une fonction exponentielle croissante de la taille des monomères dépendante d'un paramètre $\frac{t}{t_g}$ où t est le temps et t_g est un temps caractéristique de croissance fixé arbitrairement. Soit :

$$R_p(t + dt) = R_p(t)e^{\frac{dt}{t_g}} \quad (3.2)$$

t est le temps, dt est le pas de temps, $R_p(t + dt)$ est le rayon d'un monomère à l'instant $t + dt$ et $R_p(t)$ est le rayon d'un monomère à l'instant t , t_g est le temps caractéristique de croissance.

Une autre piste est privilégiée pour la loi de croissance et sera celle intégrée plus tard (voir 3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire) dans le code DLCA. En outre, elle permet d'expliquer que la première loi de croissance de surface établie a un sens physique. Supposons que la variation de volume est proportionnelle à la concentration de l'espèce qui participe à la croissance de surface $C_{C_2H_2}$, au rayon du monomère R_p élevé à la puissance x (voir plus bas) et au temps dt .

Soit $dV = AC_{C_2H_2}R_p^x dt$ où A est une constante à déterminer.

Or, $V = \frac{4\pi R_p^3}{3}$ pour une sphère parfaite d'où $dV = 4\pi R_p^2 dR_p$.

$$4\pi R_p^2 dR_p = AC_{C_2H_2}R_p^x dt$$

$$\frac{dR_p}{dt} = \frac{A}{4\pi} C_{C_2H_2} R_p^{x-2} \text{ avec } B \text{ une constante à déterminer.}$$

$$\frac{dR_p}{dt} = BC_{C_2H_2} R_p^{x-2} \quad (3.3)$$

La valeur affectée à x dépend de la porosité de la particule primaire. Trois cas de figure se dessinent :

- $x < 2$ signifie que la surface de captation de la particule primaire est plus petite que sa surface physique. Les précurseurs ne se déposent pas de manière homogène sur la surface du monomère.
- $x = 2$ signifie que la surface de la particule primaire est parfaitement lisse. Elle n'est donc pas poreuse. La déposition des précurseurs sur la surface du monomère est supposée uniforme.

- $2 < x < 3$ signifie que la surface de la particule primaire est plissée et qu'elle présente donc une certaine porosité. Les précurseurs peuvent pénétrer à l'intérieur du monomère et s'y déposer.

Dans le code DLCA actuel, les particules primaires sont des sphères homogènes parfaites. Le cas $x = 2$ prévaut donc ici. En reportant cette valeur dans l'équation 3.3, cette dernière se réécrit :

$$\frac{dR_p}{dt} = BC_{C_2H_2} \quad (3.4)$$

En négligeant la concentration en acétylène dans l'équation 3.4 qui n'est pas encore considérée dans le programme, la première loi de croissance de surface des monomères est bien retrouvée.

3.2.2 Réévaluations du volume, de la surface libre, de la masse, du centre de masse et du rayon de giration d'un agrégat

La croissance de surface est responsable, d'une part, de l'augmentation du volume global d'un agrégat et d'autre part, d'une diminution de sa surface libre globale. Cette modification entraîne la prise en compte d'une rectification de la masse de l'agrégat.

Le volume réel d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux est égal à la somme des volumes des calottes sphériques contenues dans l'agrégat (voir le détail des calculs dans l'annexe 4). Soit :

$$V_{ag,révalué} = \sum_{i=1}^{N_p} V_{calotte,i} \quad (3.5)$$

En effet, les particules primaires qui se chevauchent ne sont plus des sphères parfaites mais deviennent des portions de sphère, appelées calottes sphériques, visibles sur la figure 3.1.

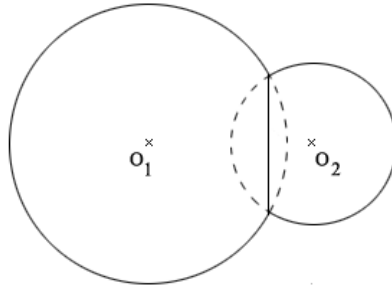


FIG. 3.1 : Intersection de deux sphères en recouvrement.

$V_{calotte,i}$ est le volume de la calotte sphérique i définie par :

$$V_{calotte,i} = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h) = \pi h^2 R - \frac{\pi h^3}{3} \text{ pour } h < R \text{ et } h \geq R \quad (3.6)$$

h est la hauteur de la calotte sphérique et R est le rayon de la sphère.

La masse réelle d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux est égale à la masse volumique ρ_p des monomères supposée constante multipliée par le volume réel de l'agrégat. Soit :

$$m_{ag,révaluée} = \rho_p V_{ag,révalué} \quad (3.7)$$

Remarque : Les calculs de la surface d'une calotte sphérique et de la surface libre réelle d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux sont présentés dans l'annexe 4.

La réévaluation de la masse d'un agrégat implique évidemment le réajustement de son centre de masse car elle intervient dans la formule de ce dernier. Le centre de masse d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux a pour expression, projetée sur les trois axes du repère cartésien (voir le détail des calculs dans l'annexe 5) :

$$\begin{cases} x_{ag} = \frac{x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} U \frac{x_j - x_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}} \\ y_{ag} = \frac{y_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} U \frac{y_j - y_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}} \\ z_{ag} = \frac{z_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} U \frac{z_j - z_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}} \end{cases} \quad (3.8)$$

N_p est le nombre de particules primaires constituant l'agrégat. V_i est le volume de la $i^{ème}$ sphère. V_{ij} est le volume d'intersection entre la sphère i et la sphère j . x_{ag} , y_{ag} , z_{ag} sont respectivement les coordonnées suivant \vec{x} , \vec{y} , \vec{z} du centre de masse de l'agrégat. x_i , y_i , z_i sont respectivement les coordonnées suivant \vec{x} , \vec{y} , \vec{z} du centre de masse de la sphère i . x_j , y_j , z_j sont les coordonnées suivant \vec{x} , \vec{y} , \vec{z} du centre de masse de la sphère j . Le terme U dépend de la forme de la particule primaire : $U = 0$ pour une sphère pleine, $U = \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2$ pour une calotte sphérique dont $h < R$ et $U = -\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2$ pour une calotte sphérique dont $h \geq R$.

La réévaluation du centre de masse d'un agrégat nécessite à son tour de réexaminer son rayon de giration ce qui est primordial pour la bonne évaluation des propriétés radiatives [1] et des propriétés diffusionnelles d'un agrégat (diamètre de mobilité, coefficient de diffusion, vitesse de translation et libre parcours moyen). Pour un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux, l'expression du rayon de giration définie au 1.2.3 n'est plus valable. Sa nouvelle formulation est (voir le détail des calculs dans l'annexe 5) :

$$R_g^2 = \frac{1}{V} \left(\sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 V_i + \sum_{i=1}^{N_p} R_{g,i}^2 V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} R_{g,ij}^2 \right) \quad (3.9)$$

V_i est le volume de la sphère i . V_{ij} est le volume d'intersection entre la sphère i et la sphère j . L_i est la distance entre le centre de masse du monomère i et celui de l'agrégat. $R_{g,i}$ est le rayon de giration de la sphère i . $R_{g,ij}$ est le rayon de giration de la portion formée par l'intersection de la sphère i et de la sphère j . V est le volume réel de l'agrégat.

3.2.3 Ajout de deux paramètres marqueurs de la morphologie des agrégats : le nombre de coordination et le paramètre de recouvrement

Le nombre de coordination N_c détermine le nombre de points de contact entre les monomères d'un agrégat. C'est un indicateur de la structure d'un agrégat [33]. Un petit nombre de coordination présage un faible recouvrement des particules primaires au sein de l'agrégat et une structure dispersée et peu rigide de ce dernier. Un grand nombre de coordination témoigne d'un fort recouvrement des particules primaires au sein de l'agrégat et d'une structure compacte et inflexible. Il intervient notamment dans le calcul du paramètre de recouvrement explicité ci-après.

Le paramètre de recouvrement caractérise l'effet de recouvrement dans un agrégat en révélant sa compacité. Il s'agit du coefficient de recouvrement 3D et s'inspire du coefficient de pénétration établi par Brasil et al. en 1999 [34] pour la caractérisation numérique de la morphologie des particules agrégées. Ces auteurs l'ont défini pour un agrégat monodispersé en taille de monomères sans recouvrement ni gangue au niveau du contact entre eux. Le recouvrement est introduit en post-traitement par l'application du même coefficient de pénétration pour tous les monomères de l'agrégat étudié ce qui, d'ailleurs, n'est pas réaliste du tout. Son expression est :

$$C_{ov} = \frac{\overline{d_p} - d_{ij}}{\overline{d_p}} \quad (3.10)$$

$\overline{d_p}$ est le diamètre moyen des particules primaires et d_{ij} est la distance centre à centre entre deux particules primaires en superposition. Ce paramètre de recouvrement est compris entre 0 et 1. Un paramètre de recouvrement égal à 0 signifie que le recouvrement au sein de l'agrégat est nul. Les monomères sont uniquement en contact ponctuel. Autrement dit, la croissance de surface des particules primaires est absente. Un paramètre de recouvrement égal à 1 signifie que le recouvrement au sein de l'agrégat est total c'est-à-dire que chaque couple de monomères le constituant ne forme plus qu'un monomère. Le résultat de cette agglomération serait un agrégat de type boule de dimension fractale égale à 3.

Dans notre cas, l'expression 3.10 est légèrement modifiée pour un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux car le diamètre des particules primaires varie. L'astuce est de calculer un paramètre de recouvrement moyen $C_{ov,moy}$ qui se définit comme la somme des paramètres de recouvrement définis pour chaque couple (i, j) de monomères en superposition, divisé par le nombre de

$$\text{coordination } N_c : C_{ov,moy} = \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} C_{ov,ij} = \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \frac{d_{p,moy} - d_{ij}}{d_{p,moy}}.$$

$$\text{Or, } d_{p,moy} = \frac{d_{p,i} + d_{p,j}}{2} = \frac{2R_{p,i} + 2R_{p,j}}{2} = R_{p,i} + R_{p,j} \text{ d'où :}$$

$$C_{ov,moy} = \frac{1}{N_c} \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \frac{R_{p,i} + R_{p,j} - d_{ij}}{R_{p,i} + R_{p,j}} \quad (3.11)$$

N_c est le nombre de coordination. $R_{p,i}$ est le rayon de la particule primaire i du couple (i, j) . $R_{p,j}$ est le rayon de la particule primaire j du couple (i, j) . d_{ij} est la distance centre à centre entre les particules primaires i et j du couple (i, j) .

Remarque : Un paramètre de recouvrement est défini en annexe 6.

Conclusion : Ce paramètre $C_{ov,moy}$ a le mérite d'être plus physique car il est évalué numériquement à chaque instant de l'agglomération, pour chaque couple de monomères dans un agrégat et il prend en compte la polydispersion en taille de monomères. Le nombre de coordination et le coefficient de recouvrement sont liés et renseignent tous les deux sur la morphologie (compacité) d'un agrégat généré.

3.3 Étude numérique : les modifications engendrées par la modélisation de la croissance de surface dans le code DLCA

Comme évoqué dans l'introduction de la modélisation de la croissance de surface des monomères, cette dernière annonce une refonte assez importante du code DLCA. Tout d'abord, un module nommé « CroissanceSurface » a été implémenté dans le programme. Sa fonction est de mettre à jour le rayon de tous les monomères à chaque pas de temps selon la loi de croissance définie au 3.2.1. Ensuite, une grande sous-routine nommée « RayonGiration » a été intégrée dans le programme dont le rôle principal est de retourner le rayon de giration d'un agrégat. À l'intérieur de ce module, le centre de masse, le volume réel, la surface libre réelle, la longueur maximale projetée, le coefficient de recouvrement, le taux de recouvrement volumique et le nombre de coordination d'un agrégat sont déterminés. La masse d'un agrégat est calculée dans le module « ParametresAgg » qui est en charge de mettre à jour les paramètres physiques de l'agrégat (masse, centre de masse, rayon de giration, volume réel, surface libre réelle, taux de recouvrement volumique, coefficient de recouvrement, nombre de coordination et nombre de sphérules constituant l'agrégat). Cette sous-routine évalue également d'autres propriétés physiques que sont le diamètre de mobilité, le coefficient de diffusion, la vitesse de déplacement et le libre parcours moyen de l'agrégat. Les paramètres physiques réévalués sont codés avec leur expression déterminée théoriquement.

Remarques importantes :

Les correctifs du centre de masse et du rayon de giration d'un agrégat sont prêts à être intégrés dans le programme. C'est pourquoi, dans un premier temps, l'étude de la croissance de surface des particules primaires est menée en réalisant deux approximations :

- L'expression du centre de masse considérée est celle d'un agrégat polydispersé en taille de monomères sans recouvrement ni gangue au niveau du contact entre eux (voir 3.2.2 Réévaluations du volume, de la surface libre, de la masse, du centre de masse et du rayon de giration d'un agrégat)

Cette hypothèse implique une erreur minime sur la position exacte du centre de masse des agrégats ayant pour conséquence un très léger décalage de ce dernier, appuyée par la figure 3.2. La croix noire est la position du centre de masse de l'agrégat avant la croissance des monomères. La croix rouge est la position exacte du centre de masse de l'agrégat après la croissance des monomères. Le rayon de giration serait donc peu impacté par cette conjecture. L'approximation est autorisée.

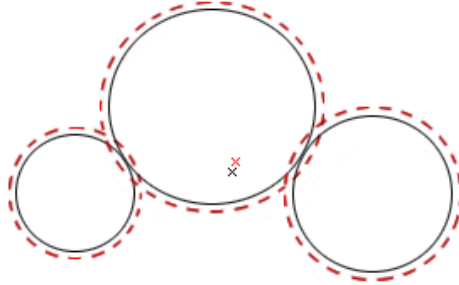


FIG. 3.2 : Illustration de l'imprécision commise pour le centre de masse de l'agrégat non réévalué.

- L'expression du rayon de giration est celle employée par Brasil et al. [34] qui l'ont définie, en s'appuyant sur les travaux de Puri et al. [35], Samson et al. [36], KoK yluK et al. [37] et Oh and Sorensen [38], telle que :

$$\frac{L}{2R_g} = 1,50 \pm 0,05 \quad (2.24)$$

R_g est le rayon de giration de l'agrégat. L est la longueur maximale projetée de l'agrégat mesurée par l'analyse de la projection bidimensionnelle d'un agrégat tridimensionnel. La figure 2.30 illustre la valeur du rapport $\frac{L}{2R_g}$ en fonction de la taille d'un agrégat pour plusieurs valeurs du paramètre de recouvrement.

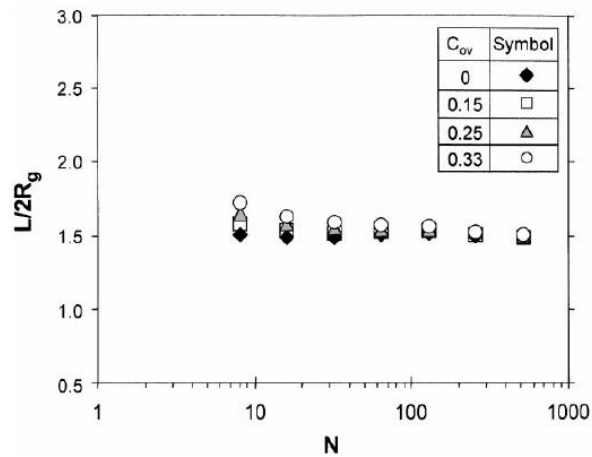


FIG. 3.3 : Rayon de giration R_g en fonction du nombre de particules primaires N contenues dans un agrégat pour différentes valeurs du coefficient de recouvrement [34].

L'introduction du recouvrement entraîne un écart relativement important par rapport à la valeur de 1,5 rencontrée en l'absence de recouvrement pour les agrégats les plus petits ($N < 10$) mais l'écart tend à se réduire pour un nombre croissant de monomères au sein des agrégats et finit par rejoindre la valeur de 1,5 constatée en l'absence de recouvrement pour les

agrégats les plus grands ($N > 100$). La supputation faite pour le rayon de giration est donc justifiée. À noter que dans notre cas, la longueur maximale projetée d'un agrégat est calculée numériquement dans le programme et non pas déterminée par une analyse post-traitement comme l'ont fait Brasil et al. Le rayon de giration d'un agrégat est codé tel que $R_g = \frac{L}{2,0}$.

Les estimations du volume réel et de la surface libre réelle d'un agrégat sont temporairement désactivées dans le programme car un problème technique survient au niveau de l'évaluation du volume et de la surface d'intersection entre deux monomères en recouvrement. En effet, le volume complet et la surface libre globale d'un agrégat deviennent négatifs lorsque l'agrégation devient effective. Par conséquent, le volume et la surface libre d'un agrégat sont pour l'instant calculés pour un agrégat sans recouvrement même si cela entraîne une surestimation de ces deux paramètres.

Dans un second temps, l'étude de la croissance de surface des particules primaires sera supervisée avec les correctifs appliqués et la bonne évaluation du volume réel et de la surface libre réelle d'un agrégat (voir 3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire).

3.4 Suivi dynamique des conditions locales de formation des suies dans la flamme

Jusqu'à maintenant, les simulations numériques ne tenaient pas compte du dynamisme local de formation des suies dans la flamme avec notamment une température de flamme toujours imposée constante. Cependant, la température d'une flamme réelle n'est pas homogène, dépend des zones de flamme et fluctue au cours du temps. C'est pourquoi, un profil de température doit être intégré dans le code DLCA pour générer des agrégats de suie dans des conditions thermodynamiques réalistes.

La dimension fractale d'ensemble et le préfacteur fractal d'ensemble sont imposés dans le modèle respectivement égaux à $d_{fe} = 1,72$ et à $k_{fe} = 1,47$. Les simulations numériques sont lancées avec les conditions initiales reportées dans le tableau 3.1 pour trois profils de température (voir figure 3.4) simulant notamment un quenching (par exemple, lors d'un changement soudain de la configuration de l'environnement (chute de pression)) et une dilution (par exemple, lors d'un prélèvement dans la flamme pour effectuer une mesure).

N	P (Pa)	ρ_p (kg. m ⁻³)	$D_{p,modal}$ (nm)	$\sigma_{p,modal}$ (nm)	f_v (ppm)
1 000	101 300	1 800	10	1,25	100

TAB. 3.1 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la température T variable dans le temps sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle de l'agglomération des particules.

Le quenching correspond au cas où l'écoulement dans la flamme est figé à partir d'un instant donné. La dilution correspond à un abaissement brusque de la température localement dans la flamme. Le premier cas, nommé cas 1, est le cas de référence où la température est fixée à $T = 1\,700$ K, c'est-à-dire constante dans le temps. Le deuxième cas, nommé cas 2, est la simulation d'une dilution : en se basant sur le cas de référence, la température vaut d'abord $T = 1\,700$ K puis à partir de $t = 2,0 \cdot 10^{-6}$ s, elle vaut $T = 300$ K. Le dernier cas, nommé cas 3, est la simulation d'un quenching : à partir de $t = 2,0 \cdot 10^{-6}$ s elle vaut $T = 2$ K. Le but est

de caractériser l'impact de la prise en compte d'une température variable dans le temps sur la cinétique d'agglomération des particules. La figure 3.4 met en lumière les différents profils de température.

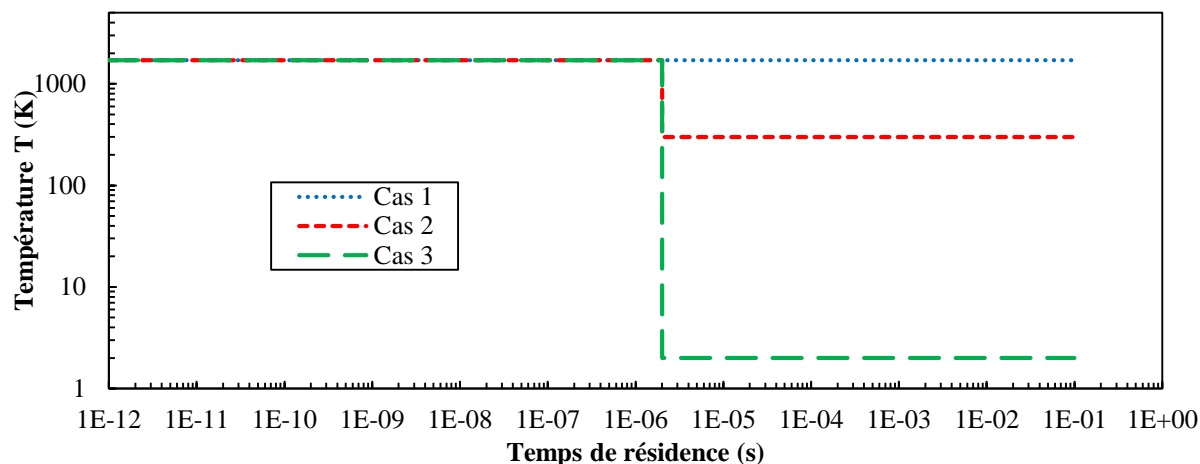


FIG. 3.4 : Profils de température pour les trois cas test.

Numériquement, un premier module nommé « LectureDonneesTemporelles » est introduit dans le programme dont le rôle est de lire un fichier texte de données d'entrée et de stocker les informations lues sous la forme d'un tableau mis en mémoire. Ce fichier comporte deux colonnes, séparées par une tabulation, dont la première ligne est l'entête des colonnes. La première colonne comporte les valeurs du temps t en secondes et la seconde contient les valeurs de la température T en degré Kelvin correspondante. Un second module nommé « RechercheValTab » est adjoint au programme. Son rôle est d'accéder au tableau précédemment créé pour rechercher la bonne valeur de la température correspondant au temps du calcul à l'instant considéré. Il est à noter que cette démarche est uniquement valable pour un tableau trié, ici dans l'ordre croissant.

Impact sur la dynamique temporelle d'agglomération :

L'implémentation d'un profil de température influence grandement la dynamique temporelle de l'agglomération des particules comparée à une température constante dans le temps. En effet, un nouveau phénomène est observé pour les cas 2 et 3 sur la figure 2.26 qui représente l'évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine : au moment où la température chute ($t = 2,0 \cdot 10^{-6} s$), l'effet est immédiat sur la dynamique de l'agglomération car elle est stoppée instantanément (surtout visible pour le cas 3). Mais le fait le plus remarquable et le plus surprenant est que l'agrégation finit par se relancer. Ce phénomène porte le nom de gélotion [39]. La fraction volumique fixée ici serait à l'origine de la gélotion car le milieu est dense et force donc l'agrégation des particules. En fait, à chaque nouvelle agglomération, l'agrégat occupe un volume de plus en plus important avec un rayon d'enveloppe imposant facilitant les contacts inter-agrégats. Pour vraiment éviter ce phénomène il faudrait soit réduire considérablement la fraction volumique soit faire chuter la température assez tôt quand les particules ont un petit rayon d'enveloppe. Ce n'est pas ici le sujet du stage même si c'est un fait très intéressant qui mérite de s'y attarder.

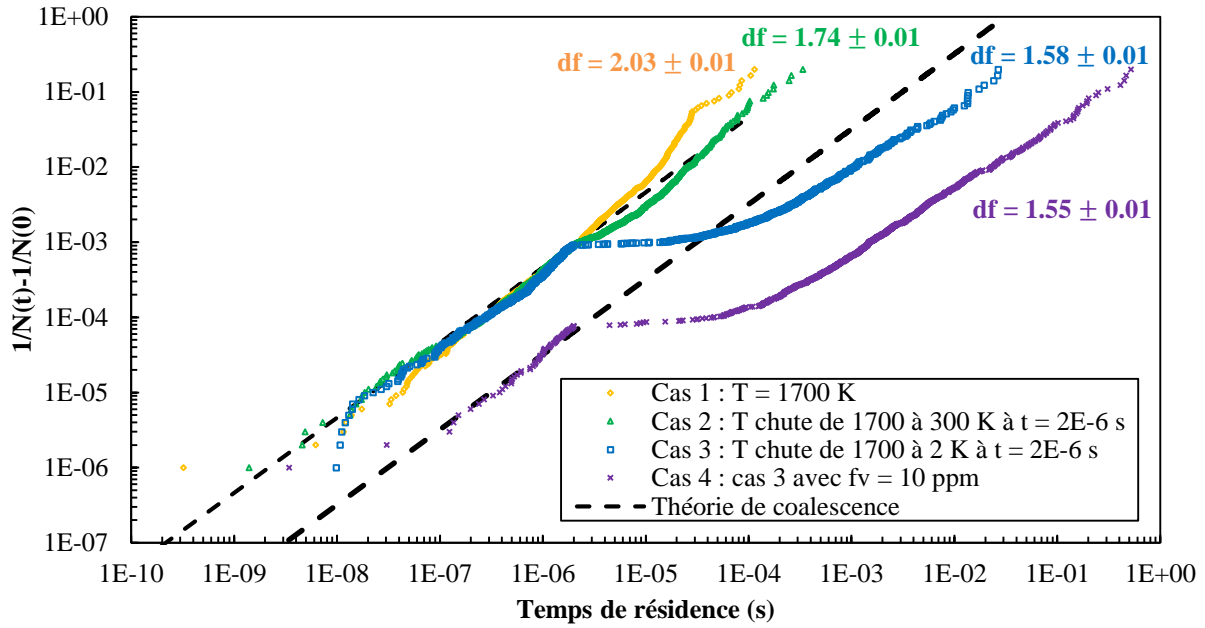


FIG. 3.5: Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différents profils de température.

C'est pourquoi, un quatrième cas a été créé et reprend les conditions du cas 3 mais avec une fraction volumique plus faible (dix fois plus petite) afin d'enrayer le phénomène de gélification. Le résultat est sensiblement le même. Un libre parcours moyen de quelques nanomètres suffit pour faire progresser l'aggrégation des particules. Mais attention, l'agglomération s'effectue sur des temps beaucoup plus long. En effet, l'aggrégation est complète à $t = 3,35 \cdot 10^{-4}$ s pour le cas 2, à $t = 2,65 \cdot 10^{-2}$ s pour le cas 3 et à $t = 5,16 \cdot 10^{-1}$ s pour le cas 4. Ainsi, le cas 4 met environ mille fois plus de temps que le cas 2 pour obtenir une agglomération complète.

Il est à remarquer que l'approche de la coalescence est toujours respectée aux petits instants de l'agglomération quel que soit le cas considéré. En revanche, pour une modification de la température dans le temps, l'approche fractale est impactée aux grands instants de l'agglomération et nécessite d'être réévaluée car la détermination de l'exposant cinétique n'est plus immédiate.

Par ailleurs, les dimensions fractales d'ensemble ont été reportées sur la figure 3.5 pour chaque cas. Il en ressort qu'une évolution temporelle de la température influe grandement sur la morphologie des agrégats générés.

Conclusion : Un profil de température réaliste doit être pris en compte pour simuler des conditions thermodynamiques réalistes (voir 3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire) et ainsi obtenir des agrégats présentant des morphologies plus réalistes.

3.5 Impact de la croissance de surface des monomères : résultats et discussion

Les résultats présentés dans cette section sont à prendre avec un certain recul à cause des imprécisions commises sur le centre de masse et le rayon de giration des agrégats et du fait que le volume réel et la surface libre réelle d'un agrégat sont mal évalués (voir 3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire). L'impact de la croissance de surface sur la

morphologie des agrégats générés (voir figure 3.6) et sur la dynamique temporelle de l'agglomération (voir figure 3.7) est étudié pour la loi de croissance linéaire dans le temps (équation 3.1) et pour la loi de croissance exponentielle en fonction du temps (équation 3.2). Le cas sans croissance de surface sert d'élément de comparaison.

La dimension fractale d'ensemble et le préfacteur fractal d'ensemble sont imposés dans le modèle respectivement égaux à $d_{fe} = 1,72$ et à $k_{fe} = 1,47$. Les simulations numériques sont lancées avec les conditions initiales reportées dans le tableau 3.2 pour les trois lois de croissance.

N	P (Pa)	ρ_p (kg. m ⁻³)	$D_{p,modal}$ (nm)	$\sigma_{p,modal}$ (nm)	f_v (ppm)
1 000	101 300	1 800	10	1,25	100

TAB. 3.2 : Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la croissance de surface sur la morphologie des agrégats et sur la dynamique temporelle de l'agglomération des particules.

Impact sur la morphologie des agrégats :

La croissance de surface des monomères joue bien évidemment un rôle majeur sur la morphologie des agrégats générés. Le recouvrement est bien visualisé sur la figure 3.6 qui illustre un agrégat virtuel généré pour chaque cas de croissance. En effet, les agrégats générés par le code DLCA tenant compte d'une loi de croissance sont beaucoup plus compacts et moins ramifiés que l'agrégat généré par le code en l'absence de croissance de surface.

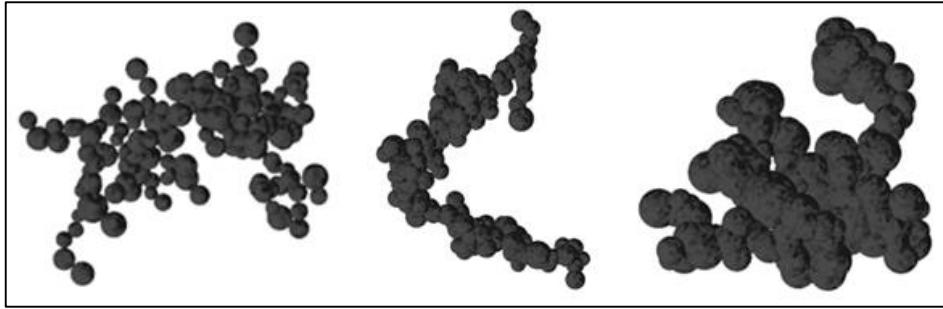


FIG. 3.6 : Agrégats de suie générés virtuellement par le code DLCA. L'agrégat de gauche, constitué de 153 monomères, est issu de l'agrégation sans croissance de surface. L'agrégat du milieu, constitué de 149 monomères, est issu de l'agrégation avec la loi de croissance linéaire. L'agrégat de droite, constitué de 153 monomères, est issu de l'agrégation avec la loi de croissance exponentielle.

Impact sur la dynamique temporelle d'agglomération :

En revanche, la croissance de surface des monomères joue un rôle moins évident voire négligeable sur la dynamique temporelle d'agglomération montré par la figure 3.7 qui représente l'évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour les trois cas de croissance.

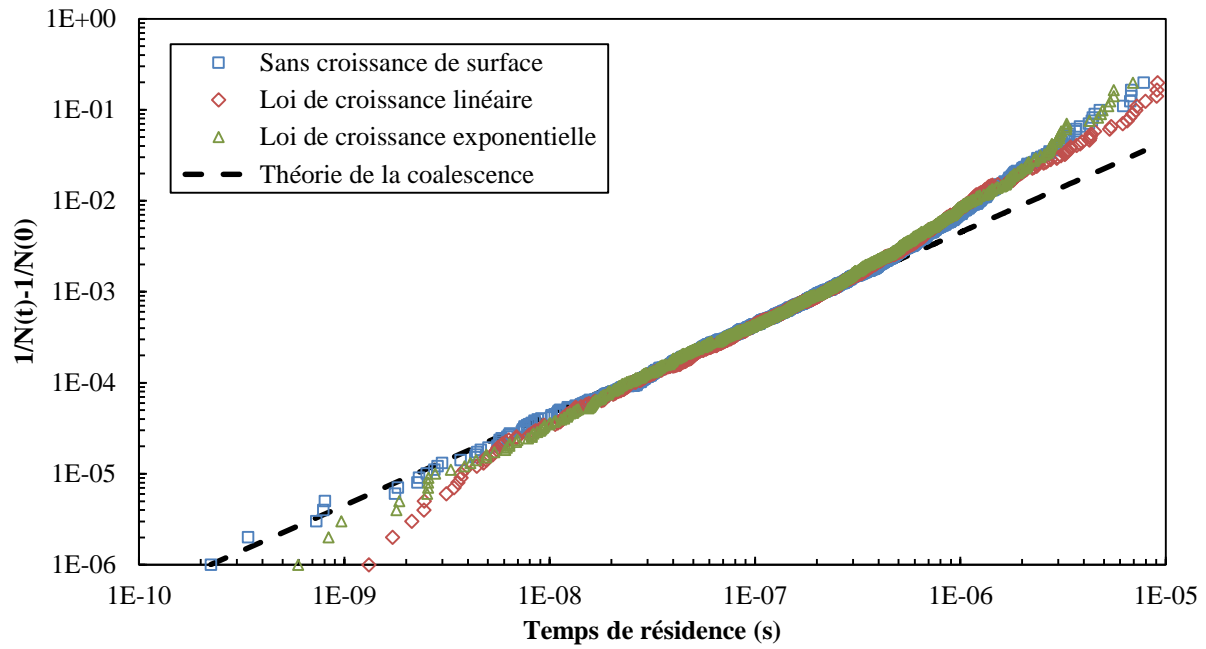


FIG. 3.7 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différentes lois de croissance de surface.

En effet, les deux courbes des lois de croissance sont quasiment superposées à celle sans croissance de surface car la croissance de surface des monomères n'influe pas, semble-t-il, sur la concentration en nombre de particules. Il est à remarquer que l'approche de coalescence paraît être respectée pour les lois de croissance aux petits instants de l'agglomération. Aux grands instants de l'agglomération, l'approche fractale est toujours valide.

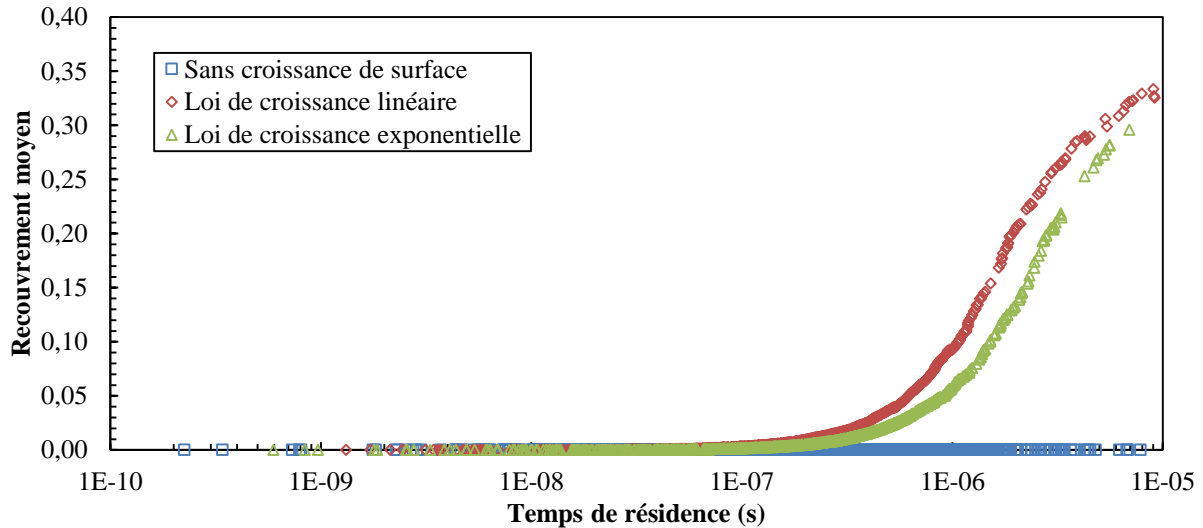


FIG. 3.8 : Évolution temporelle du recouvrement moyen des agrégats pour différentes lois de croissance de surface.

Le recouvrement moyen est bien nul pour le cas sans croissance de surface montré par la figure 3.8 qui représente l'évolution temporelle du recouvrement moyen des agrégats pour les trois lois de croissance proposées. Il croit au cours du temps pour atteindre une valeur de 0,33 pour le cas de croissance linéaire et 0,30 pour le cas de croissance exponentielle. Cette croissance s'explique par le grossissement en taille des monomères qui se recouvrent au sein

des agrégats. Les résultats obtenus sont en accord avec ceux de Brasil et al. considérés dans leur étude pour la caractérisation numérique de la morphologie des particules agrégées : $0 < Cov < 0,33$ [34].

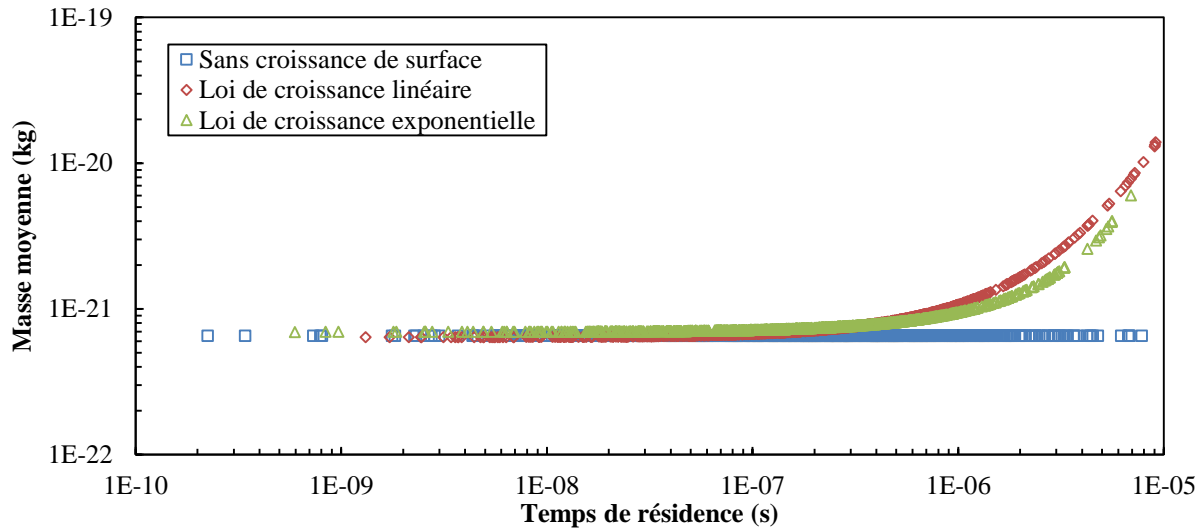


FIG. 3.9 : Évolution temporelle de la masse moyenne des agrégats pour différentes lois de croissance de surface.

La croissance de surface des monomères prédit bien le changement de masse des agrégats observé sur la figure 3.9 qui représente l'évolution temporelle de la masse moyenne des agrégats. En effet, la masse moyenne des agrégats croît au cours du temps pour les deux lois de croissance et reste constante en l'absence de croissance de surface. L'augmentation en taille des monomères donc leur volume est bien pris en compte.

3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire

Afin de continuer et terminer le travail mené pendant ces cinq mois de stage, une extension de la durée du stage pour un mois supplémentaire a été faite à ma demande. Dans un premier temps, le travail commencé sur la croissance de surface sera à compléter en rendant fonctionnel les correctifs du centre de masse et du rayon de giration implantés dans le programme. Les premiers résultats obtenus pour la modélisation de la croissance de surface décrits au 3.5 seront repris et réajustés. Dans un second temps, le fichier de données provenant d'une flamme triple de kérosène LES gentiment fourni par Vincent MOUREAU, sera utilisé pour extraire les informations pertinentes (pression, température, masse volumique, concentration de l'espèce C_2H_2 responsable de la croissance de surface des suies, concentration de l'espèce OH responsable de l'oxydation des suies) le long d'une ligne de courant traversant la flamme. Ces éléments seront ensuite placés dans le fichier de données exploité par le code DLCA pour employer la loi de croissance finale (équation 2.10). Cette dernière fera l'objet d'ajustements afin de trouver la bonne valeur de la constante intervenant dans son expression par une visualisation des agrégats générés. L'analyse des résultats sera comparée avec celles réalisées tout au long du stage (impacts sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle de l'agglomération). Une fois la modélisation de la croissance de surface correctement traitée et bien intégrée dans le programme, le phénomène d'oxydation

des particules de suie sera envisagé en réfléchissant aux modifications supplémentaires qu'apporte cette nouvelle modélisation sur le code DLCA (voir Chapitre 4 : Conclusions).

Chapitre 4 : Conclusions

L'objectif du stage était de faire évoluer le code DLCA du CORIA et de montrer la faisabilité d'une génération plus réaliste d'agrégats en intégrant dans la conception des grandeurs thermodynamiques (température locale, pression), en évaluant le plus fidèlement possible le volume, la surface des particules et en permettant un recouvrement des sphérules primaires sur la base de phénomènes physiques. Ce but est quasiment atteint et le sera complètement d'ici la fin du stage d'où l'extension de la durée du stage faite à ma demande (voir 3.6 Travail à poursuivre pour le mois supplémentaire).

Une recherche bibliographique sur l'agrégation des nanoparticules modélisée numériquement a été effectuée pour situer les tâches à accomplir sur le code DLCA du CORIA, c'est-à-dire ses limites, ses défauts à corriger et les améliorations à apporter pour le rendre plus physique. À partir de l'état de l'art dressé, deux grands axes de travail ont été privilégiés : le façonnage du code DLCA sans recouvrement des monomères puis avec recouvrement des particules primaires avec l'intégration de la modélisation de la croissance de surface des sphérules primaires.

La mise en œuvre du code DLCA sans la modélisation du recouvrement consistait à supprimer le recouvrement des monomères non voulu qui se produisait de temps à autre. Elle s'est d'abord traduite par la fixation des bugs et des défauts numériques rencontrés lors de la prise en main du code afin de partir sur un code parfaitement fonctionnel pour l'intégration des modèles physiques. La suppression partielle du recouvrement a été rendue possible par la mise en place de tests et vérifications, qui reposent sur la comparaison des distances centre à centre ou bord à bord avec la somme des rayons de chaque couple de monomères, pour s'assurer de l'absence de chevauchement entre les particules lors de leur génération dans le domaine et au cours de l'agglomération. L'élimination du recouvrement a été définitive grâce à l'amélioration des conditions aux limites périodiques du système. Le domaine de calcul est dupliqué dans les trois directions de l'espace lors de la détermination des contacts inter-agrégats possibles pour prendre en compte ceux qui étaient oubliés auparavant. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle demande une ressource numérique assez importante à fournir. À la suite de ces modifications, la fonction β développée par Yon et al. en 2015 a été implémentée dans le code DLCA. Une étude approfondie de ce modèle a montré qu'il est capable de générer des agrégats de suie avec des morphologies variables. Sa mise en place dans le programme a été validée car il permet déjà de rendre le code DLCA plus physique. Une exploration annexe servant de préambule sur l'effet de la température a été réalisée et a souligné l'intérêt de considérer des conditions thermodynamiques réalistes qui jouent un rôle certain sur la morphologie des agrégats et la dynamique temporelle d'agglomération.

La mise en œuvre du code DLCA avec la modélisation du recouvrement s'est d'abord manifestée par l'établissement d'une loi de croissance de surface des monomères physique et justifiée et par la réévaluation des paramètres physiques (volume, surface, masse, centre de masse et rayon de giration) des agrégats ayant fait l'objet d'une investigation théorique très

poussée (calculs longs et complexes). Un premier examen a mis en évidence l'importance de la prise en compte d'un suivi dynamique des conditions de formation des suies dans la flamme par l'intégration d'un profil de température. Les conditions thermodynamiques du gaz porteur jouent un rôle non négligeable sur la morphologie des agrégats. Une seconde étude approximative a été menée sur l'impact de la croissance de surface et a révélé que cette dernière n'a pas d'influence sur la dynamique temporelle d'agglomération. En revanche, elle modifie franchement la structure des agrégats car les agglomérats formés sont compacts. Cette seconde inspection sera nettement améliorée pendant le mois supplémentaire.

À travers les études menées au cours du stage, il apparaît que le code DLCA respecte une bonne dynamique temporelle. Le code développé paraît donc solide. À ce jour, il semble que le code DLCA du CORIA soit le plus avancé pour ce qui est de la génération virtuelle d'agrégats de suie réalistes (ce qui sera encore plus vrai d'ici la fin du stage).

Plusieurs pistes sont envisagées pour rendre le code DLCA encore plus robuste et toujours plus physique. Premièrement, le mouvement rotationnel des agrégats pourrait éventuellement être implémenté dans le programme dans la version sans croissance de surface pour s'assurer que la rotation est bien gérée, c'est-à-dire qu'elle ne génère pas de recouvrement non souhaité. Ce point est facultatif car le mouvement de rotation ne va pas modifier radicalement la morphologie des agrégats. Deuxièmement, la modélisation de l'oxydation des suies serait à considérer. Elle nécessiterait une restructuration du code DLCA car cette modélisation ferait appel à la fragmentation et à la restructuration des agrégats, éléments que le code DLCA ne sait pas gérer à ce jour. Une loi d'oxydation semblable à celle de la croissance de surface des particules primaires pourrait aussi être développée en réalisant l'hypothèse que la variation de volume serait proportionnelle à la concentration de l'espèce C_{OH} qui participe à la réduction de surface des monomères, au rayon du monomère R_p élevé à la puissance x et au temps dt . Une fois la modélisation de l'oxydation des suies correctement traitée, une loi de croissance-oxydation, qui mettrait en compétition ces deux phénomènes en fonction de la concentration locale en acétylène et en hydroxyde à un instant donné, pourrait être étudiée avec là aussi des ajustements à considérer. Enfin, la modélisation de la jointure (gange) entre deux monomères en recouvrement, qui est réalisée en post-traitement, pourrait être appréhendée et évaluée numériquement dans le programme (pas de piste de réflexion pour le moment). L'objectif de tout ce travail établi en amont est de coupler le code DLCA avec la dynamique des fluides numérique (CFD).

Références

- [1] Jérôme Yon, Métrologie et propriétés radiatives des particules de suie. Cours de Master 2 EFE.
- [2] MEAKIN Paul, A historical introduction to computer models for fractal aggregates, *Journal of Sol-Gel science and technology*, Volume 15, Issue 2, August 1999. p. 97-117
- [3] NEER, Adam et KOYLU, Umit O. Effect of operating conditions on the size, morphology, and concentration of submicrometer particulates emitted from a diesel engine. *Combustion and Flame*, 2006, vol. 146, no 1, p. 142-154.
- [4] Jérôme Yon, Génération d'un code d'agrégation de type DLCCA et étude des transpositions des propriétés physiques des suies mesurées en 2D aux valeurs en 3D, Rapport de contrat DSU/SERAC/LPMA/CDC/09-01, juillet 2009.
- [5] HAYASHI, Shinji, HISAEDA, Yutaka, ASAKUMA, Yuusuke, et al. Simulation of soot aggregates formed by benzene pyrolysis. *Combustion and flame*, 1999, vol. 117, no 4, p. 851-860.
- [6] OpenClassrooms - Introduction à Qt
(<https://openclassrooms.com/courses/programmez-avec-le-langage-c/introduction-a-qt>)
- [7] YON, J., BESCOND, A., et OUF, F.-X. A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates. *Journal of Aerosol Science*, 2015, vol. 87, p. 28-37.
- [8] LINDSTEDT, R. P. et BOCKHORN, H. Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models. Springer-Verlag Series in Chemical Physics, 1994, vol. 59, p. 417-441.
- [9] FRENKLACH, Michael, CLARY, David W., GARDINER, William C., et al. Detailed kinetic modeling of soot formation in shock-tube pyrolysis of acetylene. In : *Symposium (International) on Combustion*. Elsevier, 1985. p. 887-901.
- [10] SCHMID, Hans-Joachim, AL-ZAITONE, Belal, ARTELT, Christian, et al. Evolution of the fractal dimension for simultaneous coagulation and sintering. *Chemical engineering science*, 2006, vol. 61, no 1, p. 293-305.
- [11] W. R. Heinson, C. M. Sorensen, and A. Chakrabarti. A three parameter description of the structure of diffusion limited cluster fractal aggregates. *Journal of Colloid and Interface Science*, 375(1) :65–69, 2012.
- [12] EHRL, Lyonel, SOOS, Miroslav, et LATTUADA, Marco. Generation and geometrical analysis of dense clusters with variable fractal dimension. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2009, vol. 113, no 31, p. 10587-10599.
- [13] CHAKRABARTY, Rajan K., MOOSMÜLLER, Hans, ARNOTT, W. Patrick, et al. Low fractal dimension cluster-dilute soot aggregates from a premixed flame. *Physical review letters*, 2009, vol. 102, no 23, p. 235504.
- [14] ALLEN, Michael D. et RAABE, Otto G. Slip correction measurements of spherical solid aerosol particles in an improved Millikan apparatus. *Aerosol Science and Technology*, 1985, vol. 4, no 3, p. 269-286.

- [15] WILLEKE, Klaus, BARON, P., et MARTONEN, T. Aerosol Measurement: Principles, Techniques and Applications. *Journal of Aerosol Medicine-Deposition Clearance and Effects in the Lungs*, 1993, vol. 6, no 4, p. 317-320.
- [16] SUTHERLAND, William. LII. The viscosity of gases and molecular force. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 1893, vol. 36, no 223, p. 507-531.
- [17] S.N. Rogak, R.C. Flagan, and H.V. Nguyen. The mobility and structure of aerosol agglomerates. *Aerosol Science and Technology*, 18(1) :25–47, 1993.
- [18] SORENSEN, C. M. The mobility of fractal aggregates: a review. *Aerosol Science and Technology*, 2011, vol. 45, no 7, p. 765-779.
- [19] FILIPPOV, A. V. Drag and torque on clusters of N arbitrary spheres at low Reynolds number. *Journal of colloid and interface science*, 2000, vol. 229, no 1, p. 184-195.
- [20] VAINSHTEIN, P. et SHAPIRO, M. Mobility of permeable fractal agglomerates in slip regime. *Journal of colloid and interface science*, 2005, vol. 284, no 2, p. 501-509.
- [21] FRIEDLANDER, Sheldon K. *Smoke, dust, and haze: Fundamentals of aerosol dynamics* (Topics in Chemical Engineering). 2000.
- [22] MEAKIN, Paul, VICSEK, Tamás, et FAMILY, Fereydoon. Dynamic cluster-size distribution in cluster-cluster aggregation: Effects of cluster diffusivity. *Physical Review B*, 1985, vol. 31, no 1, p. 564.
- [23] PIERCE, F., SORENSEN, C. M., et CHAKRABARTI, A. Computer simulation of diffusion-limited cluster-cluster aggregation with an Epstein drag force. *Physical Review E*, 2006, vol. 74, no 2, p. 021411.
- [24] Paul Meakin, Computer simulation of cluster-cluster aggregation using linear trajectories: Results from three-dimensional simulations and a comparison with aggregates formed using brownian trajectories, *Journal of Colloid and Interface Science*, Volume 102, Issue 2, 1984, Pages 505-512, ISSN 0021-9797, [http://dx.doi.org/10.1016/0021-9797\(84\)90253-4](http://dx.doi.org/10.1016/0021-9797(84)90253-4).
(<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021979784902534>)
- [25] D.N. Sutherland, I. Goodarz-Nia, Floc simulation: The effect of collision sequence, *Chemical Engineering Science*, Volume 26, Issue 12, 1971, Pages 2071-2085, ISSN 0009-2509, [http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509\(71\)80045-2](http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509(71)80045-2).
(<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0009250971800453>)
- [26] Pablo Mitchell, Michael Frenklach, Monte carlo simulation of soot aggregation with simultaneous surface growth-why primary particles appear spherical, *Symposium (International) on Combustion*, Volume 27, Issue 1, 1998, Pages 1507-1514, ISSN 0082-0784, [http://dx.doi.org/10.1016/S0082-0784\(98\)80558-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0082-0784(98)80558-4).
(<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0082078498805584>)
- [27] Roy Richter, Leonard M. Sander, Zheming Cheng, Computer simulations of soot aggregation, *Journal of Colloid and Interface Science*, Volume 100, Issue 1, July 1984, Pages 203-209, ISSN 0021-9797, [http://dx.doi.org/10.1016/0021-9797\(84\)90426-0](http://dx.doi.org/10.1016/0021-9797(84)90426-0).
(<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021979784904260>)
- [28] Belal Al Zaitone, Hans-Joachim Schmid, Wolfgang Peukert, Simulation of structure and mobility of aggregates formed by simultaneous coagulation, sintering and surface growth, *Journal of Aerosol Science*, Volume 40, Issue 11, November 2009, Pages 950-964, ISSN

0021-8502,

<http://dx.doi.org/10.1016/j.jaerosci.2009.08.007>.(<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850209001475>)

[29] Alexandre Bescond, Jérôme Yon, Thierry Girasole, Corentin Jouen, Claude Rozé, Alexis Coppalle, Numerical investigation of the possibility to determine the primary particle size of fractal aggregates by measuring light depolarization, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, Volume 126, September 2013, Pages 130-139, ISSN 0022-4073, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2011.10.011>.

(<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0022407312004530>)

[30] HEINTZENBERG, Jost. Properties of the log-normal particle size distribution. *Aerosol Science and Technology*, 1994, vol. 21, no 1, p. 46-48.

[31] CHAKRABARTY, Rajan K., MOOSMÜLLER, Hans, ARNOTT, W. Patrick, et al. Low fractal dimension cluster-dilute soot aggregates from a premixed flame. *Physical review letters*, 2009, vol. 102, no 23, p. 235504.

[32] EHRL, Lyonel, SOOS, Miroslav, et LATTUADA, Marco. Generation and geometrical analysis of dense clusters with variable fractal dimension. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2009, vol. 113, no 31, p. 10587-10599.

[33] BRASIL, A. M., FARIAS, Tiago L., CARVALHO, Maria da Gracia, et al. Numerical characterization of the morphology of aggregated particles. *Journal of Aerosol Science*, 2001, vol. 32, no 4, p. 489-508.

[34] BRASIL, A. M., FARIAS, Tiago L., et CARVALHO, M. G. A recipe for image characterization of fractal-like aggregates. *Journal of Aerosol Science*, 1999, vol. 30, no 10, p. 1379-1389.

[35] PURI, RTRJRA, RICHARDSON, T. F., SANTORO, R. J., et al. Aerosol dynamic processes of soot aggregates in a laminar ethene diffusion flame. *Combustion and Flame*, 1993, vol. 92, no 3, p. 320-333.

[36] SAMSON, R. J., MULHOLLAND, George W., et GENTRY, J. W. Structural analysis of soot agglomerates. *Langmuir*, 1987, vol. 3, no 2, p. 272-281.

[37] KÖYLÜ, Ümit Özgür, FAETH, G. M., FARIAS, Tiago L., et al. Fractal and projected structure properties of soot aggregates. *Combustion and Flame*, 1995, vol. 100, no 4, p. 621-633.

[38] OH, C. et SORENSEN, C. M. The effect of overlap between monomers on the determination of fractal cluster morphology. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1997, vol. 193, no 1, p. 17-25.

[39] PIERCE, FLINT G. AGGREGATION IN COLLOIDS AND AEROSOLS. 2007. Thèse de doctorat. KANSAS STATE UNIVERSITY.

[40] HEINSON, William Raymond. Simulation studies on shape and growth kinetics for fractal aggregates in aerosol and colloidal systems. 2015. Thèse de doctorat. Kansas State University.

[41] HEINSON, W. R., SORENSEN, C. M., et CHAKRABARTI, A. Computer simulation of aggregation with consecutive coalescence and non-Coalescence stages in Aerosols. *Aerosol Science and Technology*, 2010, vol. 44, no 5, p. 380-387.

[42] OH, C. et SORENSEN, C. M. Light scattering study of fractal cluster aggregation near the free molecular regime. *Journal of Aerosol Science*, 1997, vol. 28, no 6, p. 937-957.

Annexes

Annexe 1 : Théorie de la dynamique d'agglomération des particules

La cinétique d'agglomération des particules est décrite par la fonction de collision de Smoluchowski [21] :

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i+j=k} K(i, j) n_i n_j - n_k \sum_{i+j=k} K(i, k) n_i \quad (1.1)$$

L'équation de Smoluchowski montre comment la concentration en particules change avec le temps [4, 21, 40, 23]. Le terme de gauche de l'équation 1.1 exprime la variation de la concentration n_k en particules issues de la coalescence de k monomères dans le temps. Le premier terme du membre de droite de l'équation 1.1 montre que la croissance de n_k est due à la coalescence de petites particules. Le second terme du membre de droite de l'équation 1.1 montre que la décroissance de n_k est due à par la coalescence de petites particules. Les deux termes sont liés par le noyau de coalescence K qui, comme pour la concentration en particules, constitue un paramètre essentiel de la théorie de la coalescence.

En considérant que le processus de coalescence est seulement causé par l'agitation brownienne, le paramètre de coalescence a pour expression [4] :

$$K(i, j) = 4\pi(D_i + D_j)(a_i + a_j) \quad (1.2)$$

D_i est le coefficient de diffusion du monomère i , D_j est le coefficient de diffusion du monomère j , a_i est le rayon de la particule i formée par la coalescence de i monomères et a_j est le rayon de la particule j formée par la coalescence de j monomères.

Aux premiers instants de l'agglomération, l'aérosol est constitué majoritairement de monomères c'est-à-dire que la population est quasi-monodisperse en taille de particules. De ce fait, l'aspect fractal est ignoré. Le paramètre de coalescence peut être supposé constant. La relation 1.2 se simplifie [4] :

$$K = 8\pi D D_p \quad (1.3)$$

Par conséquent, l'équation 1.1 devient :

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{K}{2} \sum_{i+j=k} n_i n_j - K n_k \sum_i n_i \quad (1.4)$$

L'équation 1.4 s'exprime sous une autre forme [4] :

$$\frac{1}{N(t)} - \frac{1}{N(0)} = \frac{K}{2V_{ol}} t \quad (1.5)$$

$N(t)$ est le nombre de particules à l'instant t , $N(0)$ est le nombre initial de particules, K est le paramètre de coalescence, V_{ol} est le volume du domaine considéré et t est le temps.

Cette formule montre que l'inverse du nombre de particules est une fonction affine du temps aux premiers instants de l'agglomération.

Aux grands instants de l'agglomération, l'approche de la coalescence n'est plus valide car la nature auto-similaire des agrégats modifie la relation du paramètre de coalescence [23,41] :

$$K(a_i + a_j) = a^\lambda K(i, j) \quad (1.6)$$

λ est la constante d'homogénéité qui caractérise la cinétique d'agrégation. L'hypothèse d'homogénéité aboutit à une solution analytique de l'équation de Smoluchowski donnée en (1.1) qui correspond à une distribution asymptotique de la taille des agrégats. Cette solution est appelée solution auto-similaire [21]. Son expression est [42] :

$$n(N_p, t) = \frac{N(0)}{\bar{N}_p^{-2}(t)} \frac{(1-\lambda)^{2-\lambda}}{\Gamma(2-\lambda)} \left(\frac{\bar{N}_p(t)}{N_p} \right)^\lambda \exp \left(-\frac{1-\lambda}{\bar{N}_p(t)} N_p \right) \quad (1.7)$$

$n(N_p, t)$ est la fonction de densité qui exprime le nombre d'agrégats contenant N_p monomères à un instant donné, $N(0)$ est le nombre initial de particules dans le domaine, $\bar{N}_p(t)$ est le nombre moyen d'agrégats contenant N_p monomères à un instant donné, λ est la constante d'homogénéité et Γ est la fonction cumulative gaussienne.

L'équation 1.7 est vérifiée lorsque les agrégats sont suffisamment grands en taille de monomères. Dans ce cas, une relation découle de l'équation 1.7 car le nombre d'agrégats à chaque instant s'exprime tel que $N(t) = \sum_{i=1}^{N_p} n(i, t)$ [4]. Cette relation est [22] :

$$\frac{1}{N(t)} - \frac{1}{N(0)} \propto t^z \quad (1.8)$$

L'inverse du nombre d'agrégats à chaque instant $N(t)$ est proportionnel à un temps t élevé à une puissance $z = \frac{1}{1-\lambda}$, appelée exposant cinétique où λ est la constante d'homogénéité.

L'exposant cinétique z est proche de 0,8 en régime moléculaire libre, de l'ordre de 1 en régime continu et proche de 2 en régime balistique [22, 23].

Annexe 2 : Principe de fonctionnement du code DLCA actuel

Le code DLCA actuel utilise un algorithme de type Monte Carlo, tridimensionnel et hors réseau [4]. Tout d'abord, N monomères sont générés aléatoirement et répartis uniformément au sein d'un cube virtuel dont le côté $L = XD_{p,modal}$ fixe la fraction volumique du milieu considéré tel que $f_v = \frac{N\pi}{6X^3}$ où N est le nombre de sphérules initial, $D_{p,modal}$ est le diamètre modal des particules primaires et X est le paramètre de largeur du domaine. À chaque monomère sont affectés aléatoirement les valeurs des trois coordonnées (X , Y , Z) de l'espace euclidien. À chaque monomère est également attribué un diamètre géométrique aléatoire suivant une loi normale ou log-normale autour d'un diamètre modal initialisé dans le fichier « params » (voir mode d'emploi ci-dessous). À chaque monomère est aussi conféré un numéro de label pour symboliser l'appartenance à un agrégat. Quand les monomères sont générés leurs paramètres physiques (masse, coefficient de diffusion, vitesse, libre parcours moyen, rayon de giration) sont calculés et exportés dans un fichier texte qui comporte les caractéristiques essentielles des agrégats (rayon de giration, nombre de particules primaires, diamètre de mobilité, libre parcours moyen, durée inter-collisionnelle, longueur maximale projetée, centre de masse) pour l'analyse des données en post-traitement. À l'instant initial le nombre d'agrégats est égal au nombre de monomères, c'est-à-dire qu'il y a autant de monomères que d'agrégats dans le domaine. En cours de calcul, les agrégats sont sélectionnés selon une règle de sélection spécifique : l'appel aux particules est réalisé de manière aléatoire mais avec une pondération de leur probabilité d'appel en fonction de leur durée inter-collisionnelle. Quand un agrégat est sélectionné, un vecteur directeur de direction aléatoire lui est assigné. Le temps de résidence est incrémenté du pas de temps. Son libre parcours moyen est évalué à l'aide de sa masse et de son diamètre de mobilité. Il est ensuite soit translaté de son libre parcours moyen selon la direction attribuée ou soit translaté de la distance minimale inter-collisionnelle. Dans le premier cas, il n'y a pas eu contact avec un autre agrégat. Sa nouvelle position est mise à jour. Dans le second cas, il y a eu collision avec un autre agrégat. Lors d'une collision entre deux agrégats, ils s'agglomèrent, le label le plus faible des deux est apposé à l'ensemble des monomères de l'agrégat cible ou de l'agrégat courant. Les propriétés physiques du nouvel agrégat sont réévaluées. Lorsque le programme fait appel au calcul des distances inter-agrégats, c'est-à-dire avant le déplacement de la particule choisie, les agrégats sont assimilés à des objets sphériques et trois cas sont envisagés et explicités sur la figure 2.1 :

- Si $dist = -1$ alors la sphère courante touche la sphère cible (superposition).
- Si $dist = +1$ alors la sphère courante ne peut pas toucher la sphère cible en se déplaçant suivant son vecteur directeur et sur une distance maximale.
- Sinon le contact est possible, la sphère courante doit être déplacée de la valeur $dist$ suivant son vecteur directeur pour toucher la sphère cible.

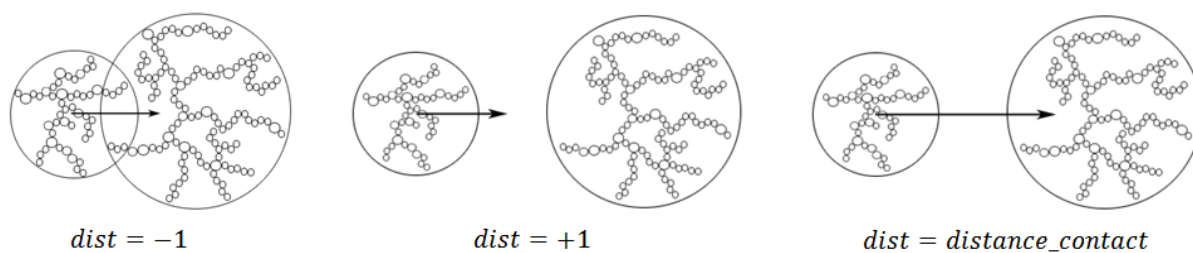


FIG. 3 : Illustration des distances inter-agrégats.

Des conditions aux limites périodiques sont imposées au cube virtuel c'est-à-dire que chaque particule qui sort du domaine est réintroduite par le côté opposé au pas de temps suivant, en conservant ses propriétés physiques, pour simuler un milieu semi-infini. Le calcul se termine quand il ne reste plus qu'un agrégat dans le domaine.

L'analyse des données s'effectue avec le programme « Analyse_DLCA » qui permet d'extraire un grand nombre d'informations utiles, détaillées au 1.2 Propriétés physiques des agrégats fractals, pour les études à mener.

Annexe 3 : Étude de l'influence de la température sur la morphologie des agrégats et la cinétique d'agglomération

La démarche est semblable à celles mises en place pour les études de l'influence du diamètre modal des monomères et de la fraction de volume du milieu. La dimension fractale d'ensemble et le préfacteur fractal d'ensemble sont d'abord imposés dans le modèle respectivement égaux à $d_{fe} = 1,72$ et à $k_{fe} = 1,47$. Les simulations numériques sont lancées avec les conditions initiales reportées dans le tableau 4 pour différentes valeurs de température constante dans le temps, à savoir $T = 300, 500, 700, 1\,000, 1\,300, 1\,500, 1\,700$ et $2\,000$ K. Pour chaque série, le processus est répété cinq fois par une approche itérative pour tenter d'obtenir une convergence du couple (d_{fe}, k_{fe}) , c'est-à-dire que le calcul est relancé avec le nouveau couple (d_{fe}, k_{fe}) déterminé par l'analyse des données à l'issue de la simulation numérique précédente.

N	P (Pa)	ρ_p (kg. m ⁻³)	$D_{p,modal}$ (nm)	$\sigma_{p,modal}$ (nm)	f_v (ppm)
5 000	101 300	1 800	10	1,25	1 000

TAB. 4: Données des cas test proposés pour l'étude de l'impact de la température T sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) et sur la dynamique temporelle de l'agglomération des particules.

Impact sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) :

La température joue un rôle moins évident sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) que le diamètre modal des monomères et la fraction volumique. En effet, pour l'éventail de températures balayées la dimension fractale d'ensemble reste globalement dans la gamme habituellement attendue pour un code DLCA 3D, à savoir $1,7 \leq d_{fe} \leq 1,8$ [31] même si elle dépasse légèrement cet intervalle pour les plus fortes températures ($d_{fe} = 1,83 \pm 0,01$ pour $T = 2\,000$ K) comme exposé par la figure 4 qui représente l'évolution du couple (d_{fe}, k_{fe}) en fonction de la température du milieu.

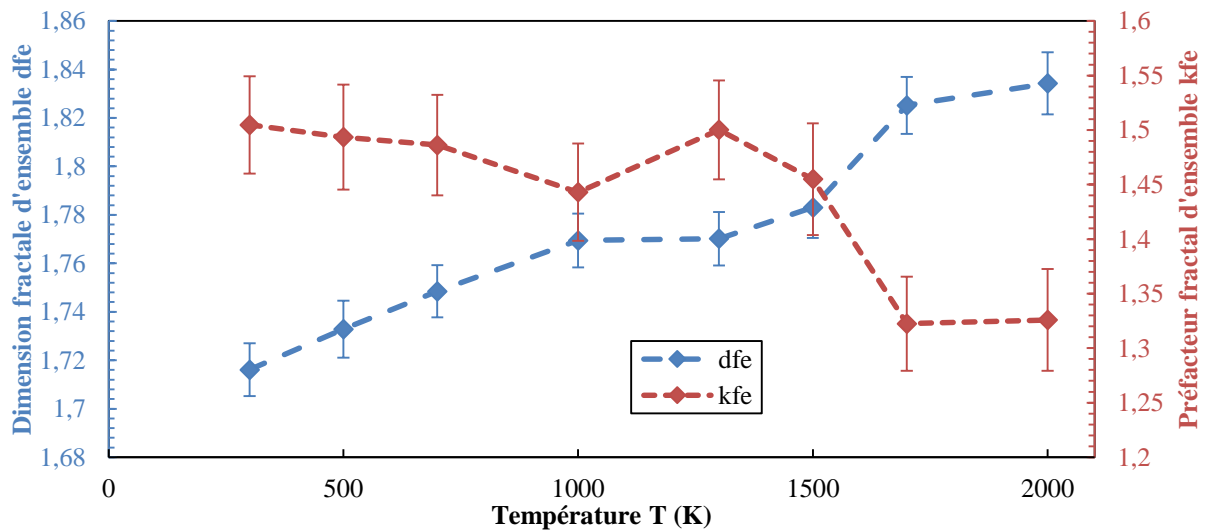


FIG. 4: Influence de la température T du milieu sur le couple (d_{fe}, k_{fe}) . Les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%.

À noter tout de même que la dimension fractale d'ensemble croît avec l'accentuation de la température car la trajectoire des particules est plutôt de nature balistique à cause du libre parcours moyen qui augmente avec la température. Comme énoncé précédemment dans les études de l'influence du diamètre modal et de la fraction volumique, la nature balistique des collisions conduit à une agrégation de type balistique. Le résultat d'une agrégation balistique est la formation d'agrégats plus compacts qui se traduit par une dimension fractale d'ensemble plus élevée.

Impact sur la dynamique temporelle d'agglomération :

La température influe sur la cinétique d'agglomération des particules comme en témoigne la figure 5 qui affiche l'évolution temporelle de l'inverse de la concentration en agrégats dans le domaine pour différentes températures allant de 300 à 2 000 K. Aux petits instants de l'agglomération, les courbes suivent la théorie de la coalescence quelle que soit la température. C'est l'approche de la coalescence qui prévaut. Aux grands instants de l'agglomération, les courbes dévient fortement de la théorie de la coalescence avec l'augmentation de la température. C'est l'approche fractale qui prédomine. La théorie de la cinétique d'agglomération est donc respectée (voir 1.2.6 Dynamique temporelle de l'agglomération des particules).

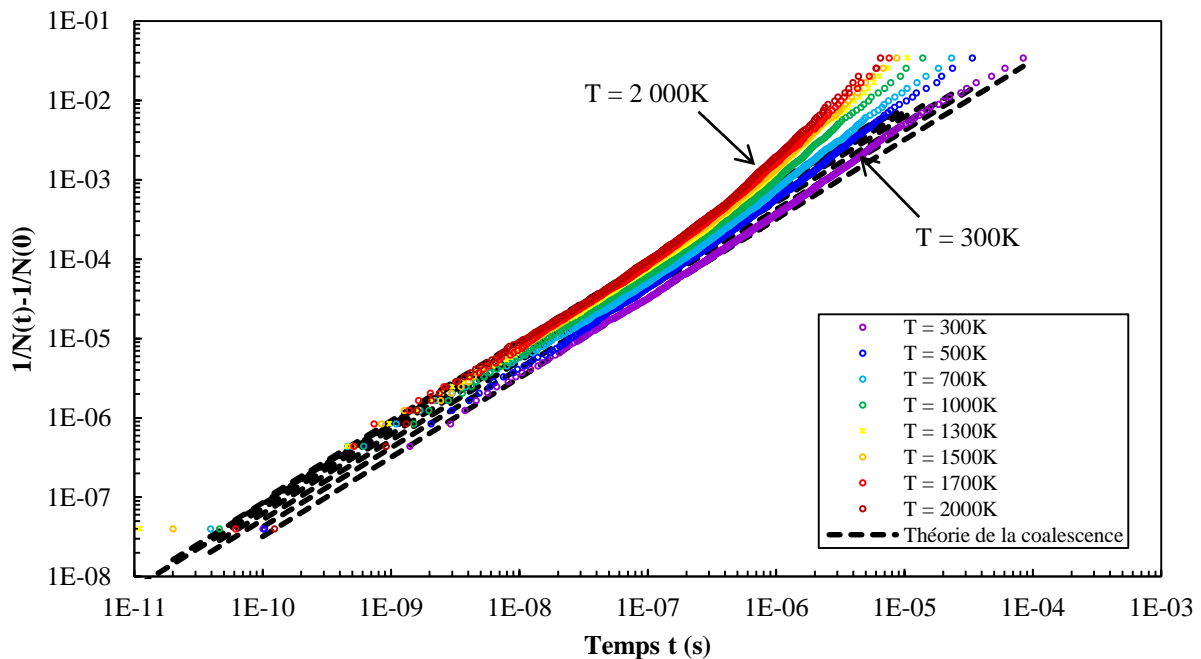


FIG. 5 : Évolution temporelle de l'inverse du nombre d'agrégats dans le domaine pour différentes valeurs de température T allant d'un milieu frais ($T = 300K$) à un milieu chaud ($T = 2\,000K$).

L'augmentation de la température accélère l'agglomération des particules car l'agitation thermique est plus forte favorisant une fréquence de collisions plus élevée.

Le rapport $\frac{l_{pm}}{dist}$ est tracé en fonction du nombre de Knudsen Kn pour représenter les régimes d'écoulement et le mode d'agrégation sur la figure 6. La température joue un rôle sur le mode d'agrégation. En effet, une augmentation de la température entraîne un mode d'agrégation

plutôt balistique car le libre parcours moyen des particules croît avec l'élévation de la température favorisant des trajectoires balistiques. Une diminution de la température provoque un mode d'agrégation plutôt diffusionnel car le libre parcours moyen des particules décroît avec l'abaissement de la température favorisant des trajectoires diffusionnelles. La température joue un rôle négligeable sur le régime d'écoulement. En effet, le régime d'écoulement est d'abord le régime moléculaire libre puis la transition de régime s'opère en cours d'agrégation quelle que soit la température imposée.

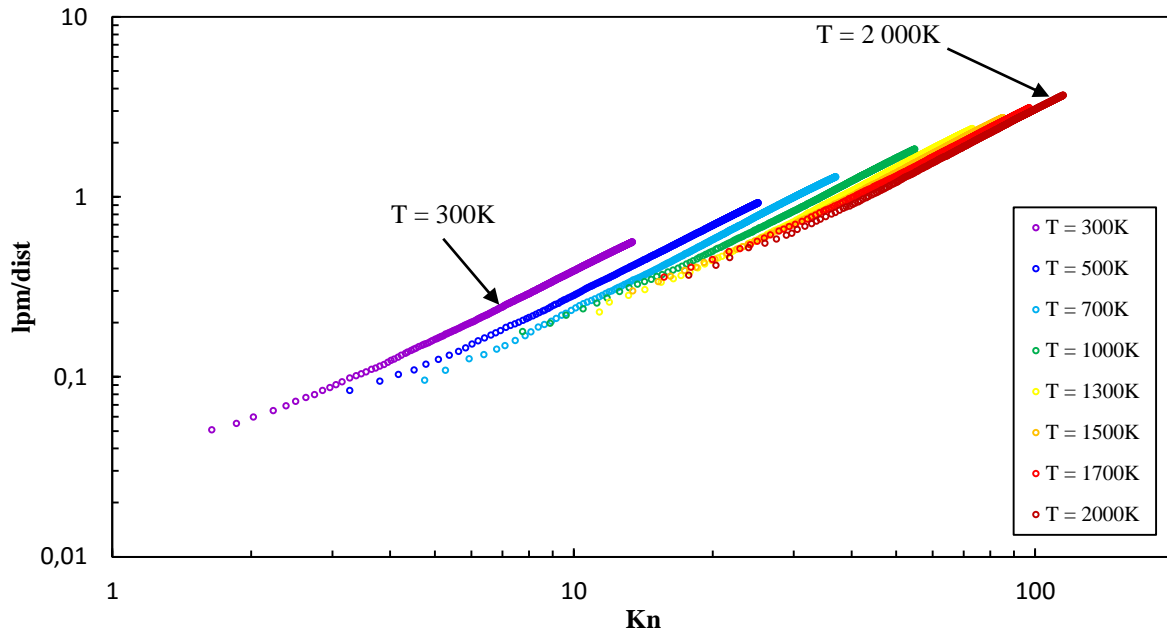


FIG. 6 : Évolution temporelle du régime d'écoulement et du mode d'agrégation pour différentes valeurs de température T allant d'un milieu frais ($T = 300K$) à un milieu chaud ($T = 2000K$).

Annexe 4 : Calcul du volume réel et de la surface libre réelle de deux sphères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre elles

1 Calcul du volume réel de deux sphères en recouvrement

1.1 Calcul du volume d'une calotte sphérique de hauteur $h < R$

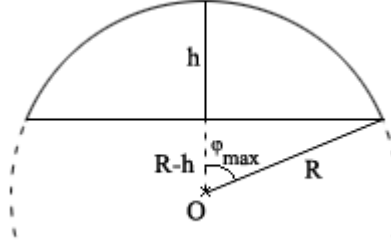


FIG. 7 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

$$V_{calotte} = \iiint_{V_{calotte}} dV$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \iiint_{V_{calotte}} r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \int_0^{\varphi_{max}} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_{r_{min}}^R r^2 dr \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \int_0^{\varphi_{max}} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^3}{3} \right]_{r_{min}}^R \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = 2\pi \int_0^{\varphi_{max}} \frac{R^3 - r_{min}^3}{3} \sin(\varphi) d\varphi$$

Or, $\cos(\varphi) = \frac{R-h}{r_{min}}$ d'où :

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{2\pi}{3} \left(R^3 \int_0^{\varphi_{max}} \sin(\varphi) d\varphi - (R-h)^3 \int_0^{\varphi_{max}} \frac{\sin(\varphi)}{\cos^3(\varphi)} d\varphi \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{2\pi}{3} \left(R^3 [-\cos(\varphi)]_0^{\varphi_{max}} - (R-h)^3 \left[\frac{1}{2 \cos^2(\varphi)} \right]_0^{\varphi_{max}} \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{2\pi}{3} \left(R^3 (1 - \cos(\varphi_{max})) - \frac{(R-h)^3}{2} \left(\frac{1}{\cos^2(\varphi_{max})} - 1 \right) \right)$$

Or, $\cos(\varphi_{max}) = \frac{R-h}{R}$ d'où :

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{2\pi}{3} \left(R^3 \left(1 - \frac{R-h}{R} \right) - \frac{(R-h)^3}{2} \left(\frac{R^2}{(R-h)^2} - 1 \right) \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{2\pi}{3} \left(hR^2 - \frac{R^2(R-h)}{2} + \frac{(R-h)^3}{2} \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{\pi}{3} (2hR^2 - R^3 + hR^2 + R^3 - 3hR^2 + 3h^2R - h^3)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{\pi}{3} (3h^2R - h^3)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} dV = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h)$$

$$\boxed{V_{calotte} = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h)}$$

1.2 Calcul du volume d'une calotte sphérique de hauteur $h \geq R$

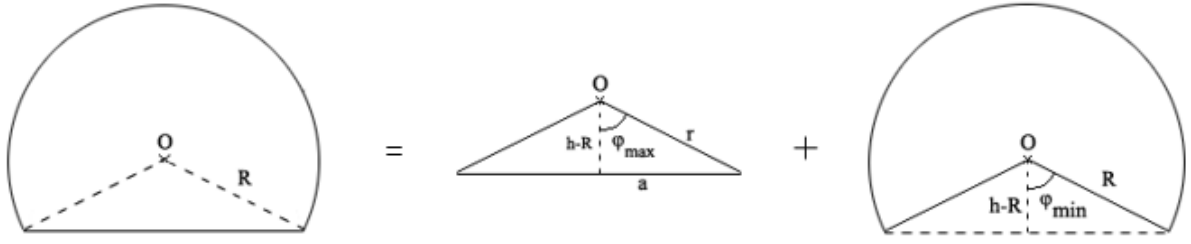


FIG. 8 : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

$$V_{\text{complémentaire}} = V_{\text{cône}} + V_{\text{reste}}$$

$$\iiint_{V_{\text{calotte}}} dV = \iiint_{V_{\text{cône}}} dV + \iiint_{V_{\text{reste}}} dV$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \iiint_{V_{\text{cône}}} r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \int_0^{\varphi_{\max}} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_0^{r_{\max}} r^2 dr \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \int_0^{\varphi_{\max}} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^3}{3} \right]_0^{r_{\max}} \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = 2\pi \int_0^{\varphi_{\max}} \frac{r_{\max}^3}{3} \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\text{Or, } \cos(\varphi) = \frac{h-R}{r_{\max}} \text{ d'où :}$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{2\pi}{3} \int_0^{\varphi_{\max}} \frac{(h-R)^3}{\cos^3(\varphi)} \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{2\pi(h-R)^3}{3} \int_0^{\varphi_{\max}} \frac{\sin(\varphi)}{\cos^3(\varphi)} d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{2\pi(h-R)^3}{3} \left[\frac{\tan^2(\varphi)}{2} \right]_0^{\varphi_{\max}}$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{\pi(h-R)^3}{3} \tan^2(\varphi_{\max})$$

$$\text{Or, } \tan(\varphi_{\max}) = \frac{(2hR-h^2)^{\frac{1}{2}}}{h-R} \text{ d'où :}$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{\pi(h-R)^3}{3} \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2}$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{\pi(h-R)}{3} (2hR - h^2)$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{\pi}{3} (2h^2R - h^3 - 2hR^2 + h^2R)$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{\pi}{3} (3h^2R - 2hR^2 - h^3)$$

$$\iiint_{V_{\text{cône}}} dV = \frac{\pi h}{3} (3hR - 2R^2 - h^2)$$

$$\iiint_{V_{\text{reste}}} dV = \iiint_{V_{\text{reste}}} r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{reste}}} dV = \int_{\varphi_{\min}}^{\pi} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_0^R r^2 dr \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{\text{reste}}} dV = \int_{\varphi_{\min}}^{\pi} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^3}{3} \right]_0^R \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{reste}} dV = 2\pi \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \frac{R^3}{3} \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{reste}} dV = \frac{2\pi R^3}{3} \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{reste}} dV = \frac{2\pi R^3}{3} [-\cos(\varphi)]_{\varphi_{min}}^{\pi}$$

$$\iiint_{V_{reste}} dV = \frac{2\pi R^3}{3} (1 + \cos(\varphi_{min}))$$

Or, $\cos(\varphi_{min}) = \frac{h-R}{R}$ d'où :

$$\iiint_{V_{reste}} dV = \frac{2\pi R^3}{3} \left(1 + \frac{h-R}{R}\right)$$

$$\iiint_{V_{reste}} dV = \frac{2\pi R^3}{3} \frac{h}{R}$$

$$\iiint_{V_{reste}} dV = \frac{2\pi h R^2}{3}$$

$$\iiint_{V_{complémentaire}} dV = \frac{\pi h}{3} (3hR - 2R^2 - h^2) + \frac{2\pi h R^2}{3}$$

$$\iiint_{V_{complémentaire}} dV = \frac{\pi h}{3} (3hR - 2R^2 - h^2 + 2R^2)$$

$$\iiint_{V_{complémentaire}} dV = \frac{\pi h}{3} (3hR - h^2)$$

$$\iiint_{V_{complémentaire}} dV = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h)$$

$$\boxed{V_{complémentaire} = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h)}$$

Vérification :

$$V_{sphère} = V_{calotte} + V_{complémentaire}$$

$$V_{sphère} = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h) + \frac{\pi (2R-h)^2}{3} (3R - (2R - h))$$

$$V_{sphère} = \frac{\pi h^2}{3} (3R - h) + \frac{\pi (2R-h)^2}{3} (R + h)$$

$$V_{sphère} = \frac{3\pi h^2 R}{3} - \frac{\pi h^3}{3} + \frac{\pi}{3} (4R^2 - 4hR + h^2)(R + h)$$

$$V_{sphère} = \frac{3\pi h^2 R}{3} - \frac{\pi h^3}{3} + \frac{\pi}{3} (4R^3 + 4hR^2 - 4hR^2 - 4h^2 R + h^2 R + h^3)$$

$$V_{sphère} = \frac{3\pi h^2 R}{3} - \frac{\pi h^3}{3} + \frac{\pi}{3} (4R^3 - 3h^2 R + h^3)$$

$$V_{sphère} = \frac{3\pi h^2 R}{3} - \frac{\pi h^3}{3} + \frac{4\pi R^3}{3} - \frac{3\pi h^2 R}{3} + \frac{\pi h^3}{3}$$

$$V_{sphère} = \frac{4\pi R^3}{3}$$

On retrouve bien le volume d'une sphère complète.

1.3 Calcul du volume d'intersection de deux sphères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre elles

1.3.1 Cas 1 : $d \geq R_1 + R_2$

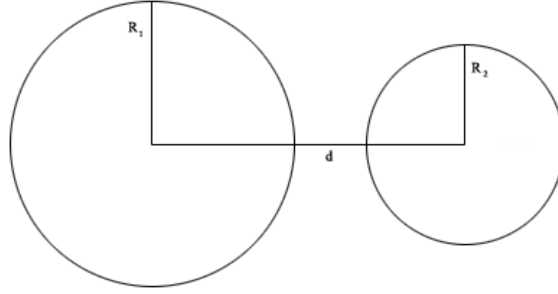


FIG. 9 : $d \geq R_1 + R_2$.

$$V_{intersect} = 0$$

1.3.2 Cas 2 : $R_1 \leq d < R_1 + R_2$

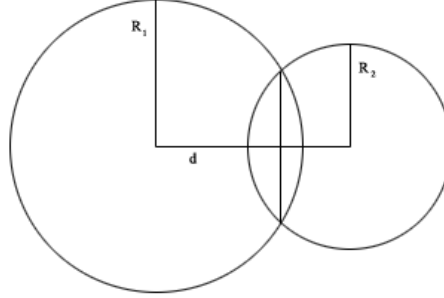


FIG. 10 : $R_1 \leq d < R_1 + R_2$.

$$V_{intersect} = V_{calotte,1} + V_{calotte,2} = \frac{\pi h_1^2}{3}(3R_1 - h_1) + \frac{\pi h_2^2}{3}(3R_2 - h_2)$$

1.3.3 Cas 3 : $R_1 - R_2 \leq d < R_1$

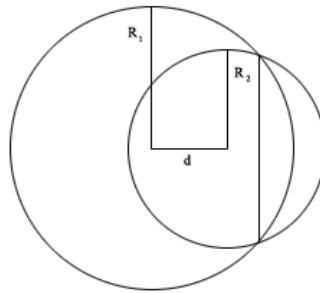


FIG. 11 : $R_1 - R_2 \leq d < R_1$.

$$V_{intersect} = V_{calotte,1} + V_{calotte,2} = \frac{\pi h_1^2}{3}(3R_1 - h_1) + \frac{\pi h_2^2}{3}(3R_2 - h_2)$$

1.3.4 Cas 4 : $d < R_1 - R_2$

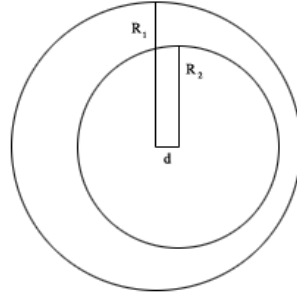


FIG. 12 : $d < R_1 - R_2$.

$$V_{intersect} = \frac{4}{3}\pi \min(R_1, R_2)^3$$

1.3.5 Détermination des hauteurs des calottes sphériques comprises dans le volume d'intersection

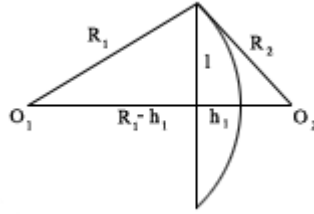


FIG. 13 : Détermination de h_1 .

$$\begin{aligned} R_1^2 &= l^2 + (R_1 - h_1)^2 \\ R_2^2 &= l^2 + (d - (R_1 - h_1))^2 \\ R_1^2 - R_2^2 &= (R_1 - h_1)^2 - (d - (R_1 - h_1))^2 \\ R_1^2 - R_2^2 &= (R_1 - h_1)^2 - d^2 + 2d(R_1 - h_1) - (R_1 - h_1)^2 \\ R_1^2 - R_2^2 &= -d^2 + 2dR_1 - 2dh_1 \\ R_1^2 - 2dR_1 + d^2 &= R_2^2 - 2dh_1 \\ (R_1 - d)^2 &= R_2^2 - 2dh_1 \end{aligned}$$

$$\boxed{h_1 = \frac{R_2^2 - (R_1 - d)^2}{2d}}$$

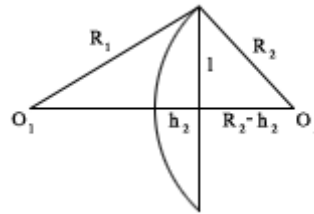


FIG. 14 : Détermination de h_2 .

$$\begin{aligned} R_2^2 &= l^2 + (R_2 - h_2)^2 \\ R_1^2 &= l^2 + (d - (R_2 - h_2))^2 \\ R_2^2 - R_1^2 &= (R_2 - h_2)^2 - (d - (R_2 - h_2))^2 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
R_2^2 - R_1^2 &= (R_2 - h_2)^2 - d^2 + 2d(R_2 - h_2) - (R_2 - h_2)^2 \\
R_2^2 - R_1^2 &= -d^2 + 2dR_2 - 2dh_2 \\
R_2^2 - 2dR_2 + d^2 &= R_1^2 - 2dh_2 \\
(R_2 - d)^2 &= R_1^2 - 2dh_2
\end{aligned}$$

$$h_2 = \frac{R_1^2 - (R_2 - d)^2}{2d}$$

Conclusion : $V_{réel} = V_1 + V_2 - V_{intersect} = \frac{4\pi}{3}(R_1^3 + R_2^3) - V_{intersect}$

2 Calcul de la surface réelle de deux sphères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre elles

2.1 Calcul de la surface d'une calotte sphérique de hauteur $h < R$

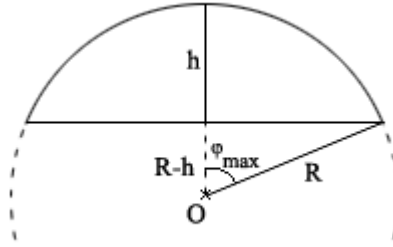


FIG. 15 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

$$\begin{aligned}
S_{calotte} &= \iint_{S_{calotte}} dS \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= \iint_{S_{calotte}} R^2 \sin(\varphi) d\theta d\varphi \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= R^2 \int_0^{\varphi_{max}} \sin(\varphi) d\varphi \int_0^{2\pi} d\theta \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= R^2 [\theta]_0^{2\pi} [-\cos(\varphi)]_0^{\varphi_{max}} \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= 2\pi R^2 (1 - \cos(\varphi_{max})) \\
\text{Or, } \cos(\varphi) &= \frac{R-h}{R} \text{ d'où :} \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= 2\pi R^2 \left(1 - \frac{R-h}{R}\right) \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= 2\pi R^2 \frac{h}{R} \\
\iint_{S_{calotte}} dS &= 2\pi R h
\end{aligned}$$

$$S_{calotte} = 2\pi R h$$

2.2 Calcul de la surface d'une calotte sphérique de hauteur $h \geq R$

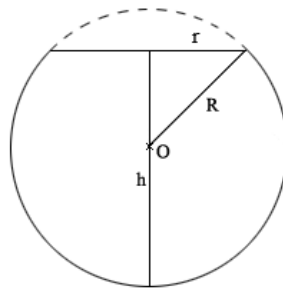


FIG. 16 : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

$$S_{\text{sphère}} = S_{\text{calotte}} + S_{\text{complémentaire}}$$

$$S_{\text{complémentaire}} = S_{\text{sphère}} - S_{\text{calotte}}$$

$$S_{\text{complémentaire}} = 4\pi R^2 - 2\pi R(2R - h)$$

$$S_{\text{complémentaire}} = 4\pi R^2 - 4\pi R^2 + 2\pi R h$$

$$\boxed{S_{\text{complémentaire}} = 2\pi R h}$$

Vérification :

$$S_{\text{sphère}} = S_{\text{calotte}} + S_{\text{complémentaire}}$$

$$S_{\text{sphère}} = 2\pi R h + 2\pi R(2R - h) = 2\pi R h + 4\pi R^2 - 2\pi R h = 4\pi R^2$$

$$S_{\text{sphère}} = 2\pi R h + 4\pi R^2 - 2\pi R h$$

$$S_{\text{sphère}} = 4\pi R^2$$

On retrouve bien la surface d'une sphère complète.

Annexe 5 : Calcul de la masse, du centre de masse et du rayon de giration d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux

Rappel : Le volume d'une sphère pleine de rayon R est : $V_{sphère} = \frac{4}{3}\pi R^3$. Le volume d'une calotte sphérique de hauteur h est : $V_{calotte} = \frac{\pi h^2}{3}(3R - h) = \pi h^2 R - \frac{\pi h^3}{3}$ pour $h < R$ et $h \geq R$.

1 Calcul du centre de masse d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux :

Rappel : Le centre de masse d'un agrégat polydispersé en taille de monomères sans recouvrement ni gangue au niveau du contact entre eux, constitué de N_p particules primaires de masse m_p , de masse volumique ρ_p et de rayon R_p a pour expression, projetée sur les trois axes du repère cartésien :

$$\begin{cases} x_{ag} = \frac{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3 x_i}{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3} \\ y_{ag} = \frac{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3 y_i}{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3} \\ z_{ag} = \frac{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3 z_i}{\sum_{i=1}^{N_p} R_{p,i}^3} \end{cases}$$

x_{ag} , y_{ag} , z_{ag} sont respectivement les coordonnées suivant \vec{x} , \vec{y} , \vec{z} du centre de masse de l'agrégat. x_i , y_i , z_i sont respectivement les coordonnées suivant \vec{x} , \vec{y} , \vec{z} du centre de masse de la sphère i .

Par définition, le centre de masse d'un agrégat est : $\frac{1}{V} \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \vec{r} dV = \vec{0}$.

V est le volume global de l'agrégat. V_i est le volume de la $i^{ème}$ sphère (ou calotte sphérique) contenue dans l'agrégat. N_p est le nombre de sphères (en recouvrement) constituant l'agrégat et $\vec{r} = \overrightarrow{OM}$ est la distance entre le centre de masse de l'agrégat et un point de la $i^{ème}$ sphère (ou calotte sphérique). En introduisant $\vec{r} = \overrightarrow{OO_i} + \overrightarrow{O_iM}$ où $\overrightarrow{OO_i}$ est la distance entre le centre de masse de l'agrégat et celui de la $i^{ème}$ sphère (ou calotte sphérique) et $\overrightarrow{O_iM}$ celle entre le centre de la $i^{ème}$ sphère (ou calotte sphérique) et un point de cette sphère (ou calotte sphérique), dans l'expression du centre de masse de l'agrégat, on obtient :

$$\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (\overrightarrow{OO_i} + \overrightarrow{O_iM}) dV = \sum_{i=1}^{N_p} \underbrace{\iiint_{V_i} \overrightarrow{OO_i} dV}_{V_i \overrightarrow{OO_i}} + \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \overrightarrow{O_iM} dV = \vec{0}$$

Pour chaque sphère homogène et parfaitement sphérique, le terme $\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_iM} dV$ est nul (par raison de symétrie). Ce terme devient non nul pour des sphères en recouvrement. Il doit donc

être calculé pour chaque portion de sphère, appelée calotte sphérique, car l'intersection de deux sphères se traduit par la formation de deux calottes sphériques.

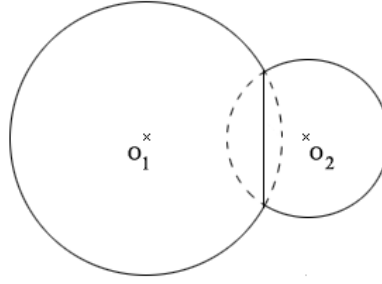


FIG. 17 : Intersection de deux sphères en recouvrement.

Calcul du terme $\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M} dV$:

$\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M} dV = \iiint r \cdot \vec{u} dV$ projeté dans les trois directions du repère sphérique

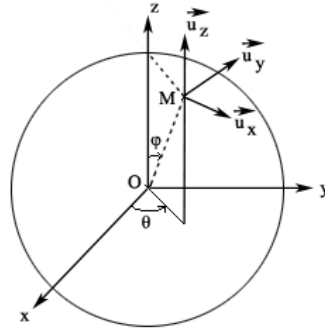


FIG. 18 : Repère sphérique.

Avec $\vec{u} \begin{pmatrix} \vec{u}_x = \sin(\varphi) \cos(\theta) \\ \vec{u}_y = \sin(\varphi) \sin(\theta) \\ \vec{u}_z = \cos(\varphi) \end{pmatrix}$ et $dV = r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$, on a :

$$\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M} dV = \begin{pmatrix} \iiint r \cdot \vec{u}_x r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi \\ \iiint r \cdot \vec{u}_y r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi \\ \iiint r \cdot \vec{u}_z r^2 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi \end{pmatrix}$$

$$\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M} dV = \begin{pmatrix} \iiint r^3 \sin^2(\varphi) \cos(\theta) dr d\theta d\varphi \\ \iiint r^3 \sin^2(\varphi) \sin(\theta) dr d\theta d\varphi \\ \iiint r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi \end{pmatrix}$$

Or, $\int_0^{2\pi} \cos(\theta) d\theta = [\sin(\theta)]_0^{2\pi} = 0$ et $\int_0^{2\pi} \sin(\theta) d\theta = [-\cos(\theta)]_0^{2\pi} = (-1 + 1) = 0$

$$\text{D'où : } \iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M} dV = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \underbrace{\iiint r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi}_{\vec{u}} \end{pmatrix}$$

Calcul du terme $U = \iiint_{V_{sphère}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi$ pour une sphère pleine de rayon R :

$$U = \int_0^R r^3 dr \int_0^{2\pi} d\theta \int_0^\pi \underbrace{\sin(\varphi) \cos(\varphi)}_{\frac{\sin(2\varphi)}{2}} d\varphi$$

$$U = \left[\frac{r^4}{4} \right]_0^R [\theta]_0^{2\pi} \left[-\frac{\cos(2\varphi)}{2} \right]_0^\pi$$

$$U = 2\pi \frac{R^4}{4} \left(-\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \right) = 0$$

$$U = 0$$

Calcul du terme $U = \iiint_{V_{calotte}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi$ pour une calotte sphérique de hauteur h inférieure au rayon R de la sphère :

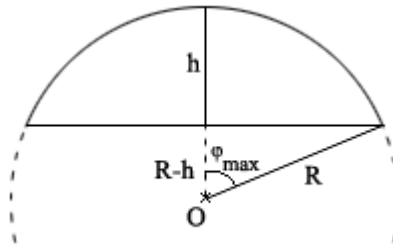


FIG. 19 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

$$U = \int_0^{\varphi_{max}} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_{r_{min}}^R r^3 dr \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U = \int_0^{\varphi_{max}} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^4}{4} \right]_{r_{min}}^R \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

Or, $\cos(\varphi) = \frac{R-h}{r_{min}}$ d'où :

$$U = 2\pi \int_0^{\varphi_{max}} \frac{R^4 - r_{min}^4}{4} \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U = \frac{\pi}{2} \int_0^{\varphi_{max}} \left(R^4 - \frac{(R-h)^4}{\cos^4(\varphi)} \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U = \frac{\pi}{2} \left(R^4 \int_0^{\varphi_{max}} \underbrace{\sin(\varphi) \cos(\varphi)}_{\frac{\sin(2\varphi)}{2}} d\varphi - (R-h)^4 \int_0^{\varphi_{max}} \frac{\sin(\varphi)}{\cos^3(\varphi)} d\varphi \right)$$

$$U = \frac{\pi}{2} \left(R^4 \left[\frac{-\cos(2\varphi)}{4} \right]_0^{\varphi_{max}} - (R-h)^4 \left[\frac{1}{2\cos^2(\varphi)} \right]_0^{\varphi_{max}} \right)$$

$$U = \frac{\pi}{2} \left(\frac{R^4}{4} (1 - \cos(2\varphi_{max})) - \frac{(R-h)^4}{2} \left(\frac{1}{\cos^2(\varphi_{max})} - 1 \right) \right)$$

$$U = \frac{\pi}{2} \left(\frac{R^4}{4} - \frac{R^4}{4} (2\cos^2(\varphi_{max}) - 1) - \frac{(R-h)^4}{2} \left(\frac{1}{\cos^2(\varphi_{max})} - 1 \right) \right)$$

Or, $\cos(\varphi_{max}) = \frac{R-h}{R}$ d'où :

$$U = \frac{\pi}{2} \left(\frac{R^4}{4} - \frac{R^4}{2} \frac{(R-h)^2}{R^2} + \frac{R^4}{4} - \frac{(R-h)^4}{2} \frac{R^2}{(R-h)^2} + \frac{(R-h)^4}{2} \right)$$

$$U = \frac{\pi}{2} \left(\frac{R^4}{2} - \frac{R^2(R-h)^2}{2} - \frac{R^2(R-h)^2}{2} + \frac{(R-h)^4}{2} \right)$$

$$\begin{aligned}
U &= \frac{\pi}{4} (R^4 - 2R^2(R-h)^2 + (R-h)^4) \\
U &= \frac{\pi}{4} (R^4 - 2R^2(R^2 - 2hR + h^2) + (R^4 - 4hR^3 + 6h^2R^2 - 4h^3R + h^4)) \\
U &= \frac{\pi}{4} (R^4 - 2R^4 + 4hR^3 - 2h^2R^2 + R^4 - 4hR^3 + 6h^2R^2 - 4h^3R + h^4) \\
U &= \frac{\pi}{4} (4h^2R^2 - 4h^3R + h^4) \\
U &= \frac{\pi h^2}{4} (4R^2 - 4hR + h^2) \\
\boxed{U &= \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2}
\end{aligned}$$

Vérifications :

- Si $h \rightarrow 0$:

$$\begin{aligned}
\lim_{h \rightarrow 0} (U) &= \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 \right) \\
\lim_{h \rightarrow 0} (U) &= \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{4} \left(2R \left(1 - \frac{h}{2R} \right) \right)^2 \right) \\
\lim_{h \rightarrow 0} (U) &= \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{4} 4R^2 \left(1 - \frac{h}{R} \right) \right) \\
\lim_{h \rightarrow 0} (U) &= \pi h^2 R^2
\end{aligned}$$

Or, le volume de la calotte sphérique avec $h \rightarrow 0$ est :

$$V_{calotte(h \rightarrow 0)} = \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{3} (3R - h) \right) = \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{3} 3R \right) = \pi h^2 R$$

Son centre de masse est $z_{G,théorique} = R$.

$$z_{G,calculé} = \frac{\lim_{h \rightarrow 0} (U)}{V_{calotte(h \rightarrow 0)}} = \frac{\pi h^2 R^2}{\pi h^2 R} = R$$

On a donc $z_{G,calculé} = z_{G,théorique}$.

- Si $h \rightarrow R$ (cas d'une demi-sphère) :

$$\begin{aligned}
\lim_{h \rightarrow R} (U) &= \lim_{h \rightarrow R} \left(\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 \right) \\
\lim_{h \rightarrow R} (U) &= \lim_{h \rightarrow R} \left(\frac{\pi R^2}{4} (2R - R)^2 \right) \\
\lim_{h \rightarrow R} (U) &= \lim_{h \rightarrow R} \left(\frac{\pi R^2}{4} R^2 \right) \\
\lim_{h \rightarrow R} (U) &= \frac{\pi R^4}{4}
\end{aligned}$$

Or, le volume de la demi-sphère est $V_{demi-sphère} = \frac{2\pi R^3}{3}$ et son centre de masse est $z_{G,théorique} = \frac{3}{8}R$.

$$z_{G,calculé} = \frac{\lim_{h \rightarrow R} (U)}{V_{demi-sphère}} = \frac{\frac{\pi R^4}{4}}{\frac{2\pi R^3}{3}} = \frac{3}{8}R$$

On a donc $z_{G,calculé} = z_{G,théorique}$. On retrouve bien le centre de masse d'une demi-sphère.

- Si $h \rightarrow 2R$ (cas d'une sphère pleine) :

$$\lim_{h \rightarrow 2R} (U) = \lim_{h \rightarrow 2R} \left(\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow 2R} (U) = \lim_{h \rightarrow 2R} \left(\frac{\pi \cdot 4R^2}{4} (2R - 2R)^2 \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow 2R} (U) = 0$$

Or, le volume de la sphère est $V_{sphère} = \frac{4\pi R^3}{3}$ et son centre de masse est $z_{G,théorique} = 0$.

$$z_{G,calculé} = \frac{\lim_{h \rightarrow 2R} (U)}{V_{sphère}} = \frac{0}{\frac{4\pi R^3}{3}} = 0$$

On a donc $z_{G,calculé} = z_{G,théorique}$. On retrouve bien le centre de masse d'une sphère pleine.

Calcul du terme $U = \iiint_{V_{complémentaire}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi$ pour une calotte sphérique de hauteur h supérieure au rayon R de la sphère :

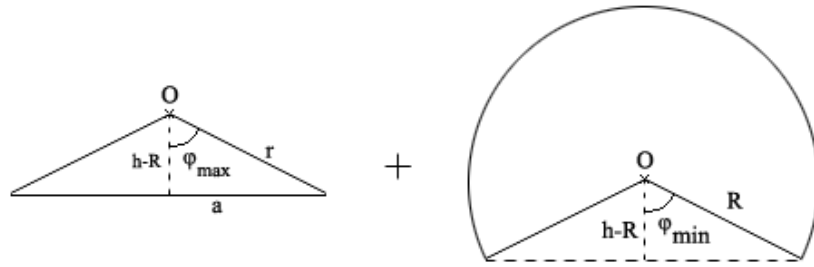


FIG 20. : Calotte sphérique complémentaire de hauteur $h \geq R$.

$$U = \underbrace{\iiint_{V_{cône}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi}_{U1} + \underbrace{\iiint_{V_{reste}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi}_{U2}$$

$$U1 = \int_0^{\varphi_{max}} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_0^{r_{max}} r^3 dr \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U1 = \int_0^{\varphi_{max}} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^4}{4} \right]_0^{r_{max}} \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U1 = 2\pi \int_0^{\varphi_{max}} \frac{r_{max}^4}{4} \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

Or, $\cos(\varphi) = \frac{h-R}{r_{max}}$ d'où :

$$U1 = \frac{\pi}{2} \int_0^{\varphi_{max}} \frac{(h-R)^4}{\cos^4(\varphi)} \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U1 = \frac{\pi(h-R)^4}{2} \int_0^{\varphi_{max}} \frac{\sin(\varphi)}{\cos^3(\varphi)} d\varphi$$

$$U1 = \frac{\pi(h-R)^4}{2} \left[\frac{\tan^2(\varphi)}{2} \right]_0^{\varphi_{max}}$$

$$U1 = \frac{\pi(h-R)^4}{4} \tan^2(\varphi_{max})$$

$$\text{Or, } \tan(\varphi_{max}) = \frac{(2hR-h^2)^{\frac{1}{2}}}{h-R} \text{ d'où :}$$

$$U1 = \frac{\pi(h-R)^4}{4} \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2}$$

$$U1 = \frac{\pi(h-R)^2}{4} (2hR - h^2)$$

$$U1 = \frac{\pi}{4} (h^2 - 2hR + R^2)(2hR - h^2)$$

$$U1 = \frac{\pi}{4} (2h^3R - h^4 - 4h^2R^2 + 2h^3R + 2hR^3 - h^2R^2)$$

$$U1 = \frac{\pi}{4} (4h^3R - h^4 - 5h^2R^2 + 2hR^3)$$

$$U1 = \frac{\pi h}{4} (4h^2R + 2R^3 - h^3 - 5hR^2)$$

$$U2 = \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_0^R r^3 dr \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U2 = \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^4}{4} \right]_0^R \right) \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U2 = 2\pi \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \frac{R^4}{4} \sin(\varphi) \cos(\varphi) d\varphi$$

$$U2 = \frac{\pi R^4}{2} \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \underbrace{\sin(\varphi) \cos(\varphi)}_{\frac{\sin(2\varphi)}{2}} d\varphi$$

$$U2 = \frac{\pi R^4}{2} \left[\frac{-\cos(2\varphi)}{4} \right]_{\varphi_{min}}^{\pi}$$

$$U2 = \frac{\pi R^4}{8} \left(\frac{\cos(2\varphi_{min})}{2\cos^2(\varphi_{min})-1} - 1 \right)$$

$$U2 = \frac{\pi R^4}{8} (2\cos^2(\varphi_{min}) - 2)$$

$$U2 = \frac{\pi R^4}{4} \cos^2(\varphi_{min}) - \frac{\pi R^4}{4}$$

$$\text{Or, } \cos(\varphi_{min}) = \frac{h-R}{R} \text{ d'où :}$$

$$U2 = \frac{\pi R^4}{4} \frac{(h-R)^2}{R^2} - \frac{\pi R^4}{4}$$

$$U2 = \frac{\pi R^2}{4} (h^2 - 2hR + R^2) - \frac{\pi R^4}{4}$$

$$U2 = \frac{\pi h^2 R^2}{4} - \frac{\pi h R^3}{2} + \frac{\pi R^4}{4} - \frac{\pi R^4}{4}$$

$$U2 = \frac{\pi h R^2}{4} (h - 2R)$$

$$U = \frac{\pi h^2 R^2}{4} - \frac{\pi h R^3}{2} + \pi h^3 R + \frac{\pi h R^3}{2} - \frac{\pi h^4}{4} - \frac{5\pi h^2 R^2}{4}$$

$$U = \frac{\pi}{4} (4h^3 R - 4h^2 R^2 - h^4)$$

$$U = \frac{\pi h^2}{4} (4hR - 4R^2 - h^2)$$

$$U = \frac{\pi h^2}{4} (-(4R^2 - 2 * 2hR + h^2))$$

$$\boxed{U = -\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2}$$

Autre manière de calculer le terme $U = \iiint_{V_{compl\grave{e}mentaire}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi$ pour une calotte sphérique de hauteur h supérieure au rayon R de la sphère :

$$U = \iiint_{V_{sph\grave{e}re}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi - \iiint_{V_{calotte}} r^3 \sin(\varphi) \cos(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$U = 0 - \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2$$

$$\boxed{U = -\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2}$$

Vérifications :

- Si $h \rightarrow 0$:

$$\lim_{h \rightarrow 0} (U) = \lim_{h \rightarrow 0} \left(-\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow 0} (U) = \lim_{h \rightarrow 0} \left(-\frac{\pi h^2}{4} \left(2R \left(1 - \frac{h}{2R} \right) \right)^2 \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow 0} (U) = \lim_{h \rightarrow 0} \left(-\frac{\pi h^2}{4} 4R^2 \left(1 - \frac{h}{R} \right) \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow 0} (U) = -\pi h^2 R^2$$

Or, le volume de la calotte sphérique avec $h \rightarrow 0$ est :

$$V_{calotte(h \rightarrow 0)} = \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{3} (3R - h) \right) = \lim_{h \rightarrow 0} \left(\frac{\pi h^2}{3} 3R \right) = \pi h^2 R$$

Son centre de masse est $z_{G,th\acute{e}orique} = -R$.

$$z_{G,calcul\acute{e}} = \frac{\lim_{h \rightarrow 0} (U)}{V_{calotte(h \rightarrow 0)}} = \frac{-\pi h^2 R^2}{\pi h^2 R} = -R$$

On a donc $z_{G,calcul\acute{e}} = z_{G,th\acute{e}orique}$.

- Si $h \rightarrow R$ (cas d'une demi-sphère) :

$$\lim_{h \rightarrow R} (U) = \lim_{h \rightarrow R} \left(-\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow R} (U) = -\frac{\pi R^2}{4} (2R - R)^2$$

$$\lim_{h \rightarrow R} (U) = -\frac{\pi R^2}{4} R^2$$

$$\lim_{h \rightarrow R} (U) = -\frac{\pi}{4} R^4$$

Or, le volume de la demi-sphère est $V_{demi-sph\grave{e}re} = \frac{2\pi R^3}{3}$ et son centre de masse est $z_{G,th\acute{e}orique} = -\frac{3}{8}R$.

$$z_{G,calcul\acute{e}} = \frac{\lim_{h \rightarrow R} (U)}{V_{demi-sph\grave{e}re}} = \frac{-\frac{\pi}{4} R^4}{\frac{2\pi R^3}{3}} = -\frac{3}{8} R$$

On a donc $z_{G,calcul\acute{e}} = z_{G,th\acute{e}orique}$. On retrouve bien le centre de masse d'une demi-sphère.

- Si $h \rightarrow 2R$ (cas d'une sphère pleine) :

$$\lim_{h \rightarrow 2R} (U) = \lim_{h \rightarrow 2R} \left(-\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 \right)$$

$$\lim_{h \rightarrow 2R} (U) = -\frac{\pi \cdot 4R^2}{4} (2R - 2R)^2$$

$$\lim_{h \rightarrow 2R} (U) = 0$$

Or, le volume d'une sphère pleine est $V_{\text{sphère}} = \frac{4}{3}\pi R^3$ et son centre de masse est $z_{G,\text{théorique}} = 0$.

$$z_{G,\text{calculé}} = \frac{\lim_{h \rightarrow 2R} (U)}{V_{\text{sphère}}} = \frac{0}{\frac{4}{3}\pi R^3} = 0$$

On a donc $z_{G,\text{calculé}} = z_{G,\text{théorique}}$. On retrouve bien le centre de masse d'une sphère pleine.

On vérifie également qu'en sommant le terme de la calotte sphérique dont $h < R$ et le terme de la calotte sphérique dont $h \geq R$ on retrouve bien le terme de la sphère. En effet :

$$U_{\text{sphère}} = U_{\text{calotte}} + U_{\text{complémentaire}}$$

$$U_{\text{sphère}} = \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 - \frac{\pi (2R - h)^2}{4} (2R - (2R - h))^2$$

$$U_{\text{sphère}} = \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 - \frac{\pi (2R - h)^2}{4} h^2$$

$$U_{\text{sphère}} = \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2 - \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2$$

$$U_{\text{sphère}} = 0$$

En résumé :

$U_{\text{sphère}} = 0$ pour une sphère pleine

$U_{\text{calotte}} = \frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2$ pour une calotte sphérique dont $h < R$

$U_{\text{complémentaire}} = -\frac{\pi h^2}{4} (2R - h)^2$ pour une calotte sphérique dont $h \geq R$

Expression du centre de masse d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux :

$$\iiint_{V_i} \vec{r} dV = \vec{0}$$

$$\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \vec{r} dV = \vec{0}$$

$$\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (\vec{OO_i} + \vec{O_iM}) dV = \vec{0}$$

$$\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \vec{OO_i} dV + \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \vec{O_iM} dV = \vec{0}$$

On projette sur l'axe des \vec{x} :

$$\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (x_i - x_G) dV + \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (x_M - x_i) dV = 0$$

$$\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (x_i - x_G) dV - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \iiint_{V_{ij}} (x_i - x_G) dV + \underbrace{\sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (x_M - x_i) dV}_0 - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \iiint_{V_{ij}} (x_M - x_i) dV = 0$$

$$\sum_{i=1}^{N_p} (x_i - x_G) V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} (x_i - x_G) V_{ij} - \left(\sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \underbrace{\iiint_{V_{ij}} x_M dV}_I - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \iiint_{V_{ij}} x_i dV \right) = 0$$

$$\sum_{i=1}^{N_p} x_i V_i - \sum_{i=1}^{N_p} x_G V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} x_i V_{ij} + \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} x_G V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I + \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} x_i V_{ij} = 0$$

$$x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - x_G \sum_{i=1}^{N_p} V_i + x_G \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I = 0$$

$$x_G \left(\sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} V_i \right) = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I - x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$x_G = \frac{\sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I - x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i}{\sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} V_i}$$

$$x_G = \frac{-(x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I)}{-(\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij})}$$

$$x_G = \frac{x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}}$$

$$x_G = \frac{A-B}{C-D}$$

$$A = x_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$B = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I$$

$$\text{Or, } I = U \frac{\overrightarrow{O_i O_j}}{\|\overrightarrow{O_i O_j}\|} \vec{x} = U \frac{x_j - x_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}$$

$$B = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} U \frac{x_j - x_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}$$

$$C = \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$D = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}$$

V_i est le volume de la $i^{\text{ème}}$ sphère. V_{ij} est le volume d'intersection entre la sphère i et la sphère j . x_G est la coordonnée suivant \vec{x} du centre de masse de l'agrégat. x_i est la coordonnée suivant \vec{x} du centre de masse de la sphère i . x_j est la coordonnée suivant \vec{x} du centre de masse de la sphère j .

En projection suivant \vec{y} :

$$y_G = \frac{y_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}}$$

$$y_G = \frac{A-B}{C-D}$$

$$A = y_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$B = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I$$

$$\text{Or, } I = U \frac{\overrightarrow{O_i O_j}}{\|\overrightarrow{O_i O_j}\|} \vec{y} = U \frac{y_j - y_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}$$

$$B = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} U \frac{y_j - y_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}$$

$$C = \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$D = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}$$

En projection suivant \vec{Z} :

$$Z_G = \frac{z_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}}$$

$$Z_G = \frac{A-B}{C-D}$$

$$A = z_i \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$B = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} I$$

$$\text{Or, } I = U \frac{\overrightarrow{O_i O_j}}{\|\overrightarrow{O_i O_j}\|} \cdot \vec{Z} = U \frac{z_j - z_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}$$

$$B = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} U \frac{z_j - z_i}{\sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}}$$

$$C = \sum_{i=1}^{N_p} V_i$$

$$D = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}$$

2 Calcul du rayon de giration d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux :

Par définition, le rayon de giration d'un objet S et de masse m est : $R_g^2 = \frac{1}{m} \iiint_V r^2 dm$ avec r la position depuis le centre de masse de S de chaque composante élémentaire de masse de l'objet. Ce calcul est directement lié à la matrice d'inertie de l'objet. Si l'objet est de densité constante, on a de manière équivalente : $R_g^2 = \frac{1}{V} \iiint_V r^2 dV$ avec V le volume de l'objet S .

Pour une sphère on trouve $R_g^2 = \frac{3}{5} R_p^2$ avec R_p le rayon de la sphère (voir plus bas). Pour un agrégat constitué de N_p sphères en recouvrement, le calcul se décompose en une somme de N_p intégrales : $R_g^2 = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} r^2 dV$ avec r la distance depuis le centre de masse de l'agrégat et V_i le volume de la $i^{\text{ème}}$ sphère (ou calotte sphérique).

En faisant apparaître le centre O_i de chaque sphérule on obtient :

$$V R_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (\overrightarrow{O O_i} + \overrightarrow{O_i M})^2 dV$$

$$V R_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} \underbrace{\iiint_{V_i} \overrightarrow{O O_i}^2 dV}_{V_i L_i^2} + \sum_{i=1}^{N_p} \underbrace{\iiint_{V_i} 2 \overrightarrow{O O_i} \cdot \overrightarrow{O_i M} dV}_{\frac{2 \|\overrightarrow{O O_i}\| \|\overrightarrow{O_i M}\| \cos(\overrightarrow{O O_i}, \overrightarrow{O_i M})}{L_i}} + \sum_{i=1}^{N_p} \underbrace{\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M}^2 dV}_{V_i R_{g,i}^2}$$

$$VR_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} V_i L_i^2 + 2 \sum_{i=1}^{N_p} L_i \iiint_{V_i} \|\vec{O_i M}\| \cos(\vec{O O_i}, \vec{O_i M}) dV + \sum_{i=1}^{N_p} V_i R_{g,i}^2$$

Où $L_i = \sqrt{(x_i - x_G)^2 + (y_i - y_G)^2 + (z_i - z_G)^2}$ est la distance de cette sphère depuis le centre de masse de l'agrégat, $R_{p,i}$ le rayon de la $i^{ème}$ sphère, $R_{g,i}$ le rayon de giration de la $i^{ème}$ sphère (ou calotte sphérique) et φ_i une coordonnée du centre de la $i^{ème}$ sphère en représentation sphérique dans le repère centré au centre de masse de l'agrégat.

Calcul du terme $\iiint_{V_{sphère}} r^2 dV$ pour une sphère pleine de rayon R :

$$\iiint_{V_{sphère}} r^2 dV = \int_0^R \int_0^{2\pi} \int_0^\pi r^4 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$\iiint_{V_{sphère}} r^2 dV = \int_0^R r^4 dr \int_0^{2\pi} d\theta \int_0^\pi \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{sphère}} r^2 dV = \left[\frac{r^5}{5} \right]_0^R [\theta]_0^{2\pi} [-\cos(\varphi)]_0^\pi$$

$$\iiint_{V_{sphère}} r^2 dV = 2\pi \frac{R^5}{5} (1 + 1)$$

$$\boxed{\iiint_{V_{sphère}} r^2 dV = \frac{4\pi R^5}{5}}$$

$$R_{g,sphère}^2 = \frac{1}{V_{sphère}} \iiint_{V_{sphère}} r^2 dV = \frac{3}{4\pi R^3} \frac{4\pi R^5}{5} = \frac{3}{5} R^2$$

$$\text{Soit } R_{g,sphère} = \sqrt{\frac{3}{5}} R_{sphère}.$$

Calcul du terme $\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV$ pour une calotte sphérique de hauteur h inférieure au rayon R de la sphérule :

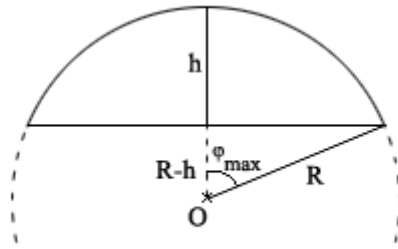


FIG. 21 : Calotte sphérique de hauteur $h < R$.

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \int_0^{\varphi_{max}} \int_0^{2\pi} \int_{r_{min}}^R r^4 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \int_0^{\varphi_{max}} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_{r_{min}}^R r^4 dr \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \int_0^{\varphi_{max}} \left([\theta]_0^{2\pi} \left[\frac{r^5}{5} \right]_{r_{min}}^R \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \int_0^{\varphi_{max}} (R^5 - r_{min}^5) \sin(\varphi) d\varphi$$

Or, $r_{min} = \frac{R-h}{\cos(\varphi_{min})}$ d'où :

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \int_0^{\varphi_{max}} \left(R^5 - \frac{(R-h)^5}{\cos^5(\varphi)} \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(R^5 \int_0^{\varphi_{max}} \sin(\varphi) d\varphi - (R-h)^5 \int_0^{\varphi_{max}} \frac{\sin(\varphi)}{\cos^5(\varphi)} d\varphi \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(R^5 [-\cos(\varphi)]_0^{\varphi_{max}} - \frac{(R-h)^5}{4} \left[\frac{1}{\cos^4(\varphi)} \right]_0^{\varphi_{max}} \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(R^5 (1 - \cos(\varphi_{max})) - \frac{(R-h)^5}{4} \left(\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 \right) \right)$$

Or, $\cos(\varphi_{max}) = \frac{R-h}{R}$ d'où :

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(R^5 \left(1 - \frac{R-h}{R} \right) - \frac{(R-h)^5}{4} \left(\frac{R^4}{(R-h)^4} - 1 \right) \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(R^5 - R^4(R-h) - \frac{R^4(R-h)}{4} + \frac{(R-h)^5}{4} \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(R^5 - R^5 + hR^4 - \frac{R^5}{4} + \frac{hR^4}{4} + \frac{(R-h)^5}{4} \right)$$

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{2\pi}{5} \left(\frac{5hR^4}{4} - \frac{R^5}{4} + \frac{(R-h)^5}{4} \right)$$

$$\boxed{\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}$$

Vérifications :

- Si $h = 0$:

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (0 - R^5 + R^5) = 0$$

- Si $h = R$ (cas d'une demi-sphère pleine) :

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5R^5 - R^5 + 0) = \frac{4\pi R^5}{10} = \frac{2\pi R^5}{5}$$

Or, le produit $V_{demi-sphère} * R_{g,p}^2$ pour une demi-sphère pleine est égal à $\frac{2\pi R_p^3}{3} * \frac{3}{5} R_p^2 = \frac{2\pi R_p^5}{5}$.

On retrouve bien la valeur $V_{demi-sphère} * R_{g,p}^2$ correspondant à une demi-sphère pleine.

- Si $h = 2R$ (cas d'une sphère pleine) :

$$\iiint_{V_{calotte}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (10R^5 - R^5 + (R-2R)^5) = \frac{\pi}{10} (10R^5 - R^5 - R^5) = \frac{8\pi R^5}{10} = \frac{4\pi R^5}{5}$$

Or, le produit $V_{sphère} * R_{g,p}^2$ pour une sphère pleine est égal à $\frac{4\pi R_p^3}{3} * \frac{3}{5} R_p^2 = \frac{4\pi R_p^5}{5}$.

On retrouve bien la valeur $V_{sphère} * R_{g,p}^2$ correspondant à une sphère pleine.

$$R_{g,calotte}^2 = \frac{1}{V_{calotte}} \iiint_{V_{calotte}} r^2 dV$$

$$R_{g,calotte}^2 = \frac{1}{\frac{\pi h^2}{3} (3R-h)} \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)$$

$$R_{g,calotte}^2 = \frac{3}{\pi h^2 (3R-h)} \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)$$

$$R_{g,calotte}^2 = \frac{3}{10} \frac{(5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}{h^2 (3R-h)}$$

$$R_{g,calotte} = \sqrt{\frac{3}{10} \frac{(5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}{h^2(3R-h)}}$$

Calcul du terme $\iiint_{V_{compl mentaire}} r^2 dV$ pour une calotte sph rique de hauteur h sup rieure au rayon R de la sph rulle :

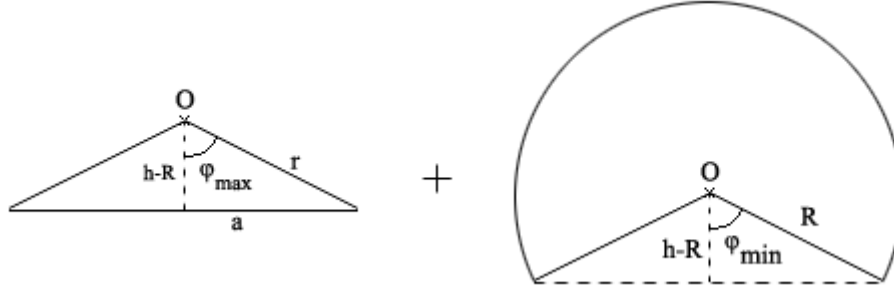


FIG. 22 : Calotte sph rique compl mentaire de hauteur $h \geq R$.

$$\iiint_{V_{compl mentaire}} r^2 dV = \iiint_{V_{c ne}} r^2 dV + \iiint_{V_{reste}} r^2 dV$$

$$\iiint_{V_{compl mentaire}} r^2 dV = \iiint_{V_{c ne}} r^4 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi + \iiint_{V_{reste}} r^4 \sin(\varphi) dr d\theta d\varphi$$

$$\iiint_{V_{c ne}} r^4 \sin \varphi dr d\theta d\varphi = \int_0^{\varphi_{max}} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_0^{r_{max}} r^4 dr \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{c ne}} r^4 \sin \varphi dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi}{5} \int_0^{\varphi_{max}} r_{max}^5 \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\text{Or, } \cos(\varphi) = \frac{h-R}{r_{max}} \text{ d'o  :}$$

$$\iiint_{V_{c ne}} r^4 \sin \varphi dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi(h-R)^5}{5} \int_0^{\varphi_{max}} \frac{\sin(\varphi)}{\cos^5(\varphi)} d\varphi$$

$$\iiint_{V_{c ne}} r^4 \sin \varphi dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi(h-R)^5}{5} \left[\frac{1}{4\cos^4(\varphi)} \right]_0^{\varphi_{max}}$$

$$\iiint_{V_{c ne}} r^4 \sin \varphi dr d\theta d\varphi = \frac{\pi(h-R)^5}{10} \left(\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 \right)$$

$$\text{Or, } \frac{1}{\cos^2(\varphi_{max})} = 1 + \tan^2(\varphi_{max}).$$

$$\text{Donc } \frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} = (1 + \tan^2(\varphi_{max}))^2 = 1 + 2\tan^2(\varphi_{max}) + \tan^4(\varphi_{max}).$$

$$\text{Soit } \frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = 2\tan^2(\varphi_{max}) + \tan^4(\varphi_{max}) = \tan^2(\varphi_{max})(2 + \tan^2(\varphi_{max})).$$

$$\text{De plus, } \tan(\varphi_{max}) = \frac{\sqrt{2hR-h^2}}{h-R}.$$

$$\text{Donc } \frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2} \left(2 + \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2} \right)$$

$$\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2} \left(\frac{2(h-R)^2 + (2hR-h^2)}{(h-R)^2} \right)$$

$$\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2} \left(\frac{2h^2 - 4hR + 2R^2 + 2hR - h^2}{(h-R)^2} \right)$$

$$\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = \frac{(2hR-h^2)}{(h-R)^2} \left(\frac{2R^2 - 2hR + h^2}{(h-R)^2} \right)$$

$$\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = \frac{4hR^3 - 4h^2R^2 + 2h^3R - 2h^2R^2 + 2h^3R - h^4}{(h-R)^4}$$

$$\frac{1}{\cos^4(\varphi_{max})} - 1 = \frac{4hR^3 - 6h^2R^2 + 4h^3R - h^4}{(h-R)^4}$$

$$\iiint_{V_{c\hat{o}ne}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{\pi(h-R)^5}{10} \left(\frac{4hR^3 - 6h^2R^2 + 4h^3R - h^4}{(h-R)^4} \right)$$

$$\iiint_{V_{c\hat{o}ne}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2}{10} (h-R)(4hR^3 - 6h^2R^2 + 4h^3R - h^4)$$

$$\iiint_{V_{c\hat{o}ne}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{\pi}{10} (4h^2R^3 - 6h^3R^2 + 4h^4R - h^5 - 4hR^4 + 6h^2R^3 - 4h^3R^2 + h^4R)$$

$$\iiint_{V_{c\hat{o}ne}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{\pi}{10} \left(\frac{-4hR^4 + 10h^2R^3 - 10h^3R^2 + 5h^4R - h^5}{(R-h)^5 - R^5 + hR^4} \right)$$

$$\iiint_{V_{c\hat{o}ne}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{\pi}{10} (hR^4 - R^5 + (R-h)^5)$$

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \left(\int_0^{2\pi} d\theta \int_0^R r^4 dr \right) \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi R^5}{5} \int_{\varphi_{min}}^{\pi} \sin(\varphi) d\varphi$$

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi R^5}{5} [-\cos(\varphi)]_{\varphi_{min}}^{\pi}$$

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi R^5}{5} (1 + \cos(\varphi_{min}))$$

Or, $\cos(\varphi_{min}) = \frac{h-R}{R}$ d'où :

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi R^5}{5} \left(1 + \frac{h-R}{R} \right)$$

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi R^5}{5} \frac{h}{R}$$

$$\iiint_{V_{reste}} r^4 \sin \varphi \, dr d\theta d\varphi = \frac{2\pi h R^4}{5}$$

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (hR^4 - R^5 + (R-h)^5) + \frac{2\pi h R^4}{5}$$

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (hR^4 - R^5 + (R-h)^5) + \frac{4\pi h R^4}{10}$$

$$\boxed{\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}$$

Autre manière de calculer le terme $\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV$:

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \iiint_{V_{sph\grave{e}re}} r^2 dV - \iiint_{V_{volcalotte}} r^2 dV$$

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{4\pi R^5}{5} - \frac{\pi}{10} (5R^4(2R-h) - R^5 + (R-(2R-h))^5)$$

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{8\pi R^5}{10} - \frac{\pi}{10} (10R^5 - 5hR^4 - R^5 + (h-R)^5)$$

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (8R^5 - 10R^5 + 5hR^4 + R^5 - (h-R)^5)$$

$$\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 - (h-R)^5)$$

$$\boxed{\iiint_{V_{compl\acute{e}mentaire}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}$$

Vérifications :

- Si $h = 0$:

$$\iiint_{V_{\text{complémentaire}}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (0 - R^5 + R^5) = 0$$

- Si $h = R$ (cas d'une demi-sphère pleine) :

$$\iiint_{V_{\text{complémentaire}}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5R^5 - R^5 + 0) = \frac{4\pi R^5}{10} = \frac{2\pi R^5}{5}$$

Or, le produit $V_{\text{demi-sphère}} * R_{g,p}^2$ pour une demi-sphère pleine est égal à $\frac{2\pi R_p^3}{3} * \frac{3}{5} R_p^2 = \frac{2\pi R_p^5}{5}$.

On retrouve bien la valeur $V_{\text{demi-sphère}} * R_{g,p}^2$ correspondant à une demi-sphère pleine.

- Si $h = 2R$ (cas d'une sphère pleine) :

$$\iiint_{V_{\text{complémentaire}}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (10R^5 - R^5 + (R - 2R)^5) = \frac{\pi}{10} (10R^5 - R^5 - R^5) = \frac{8\pi R^5}{10} = \frac{4\pi R^5}{5}$$

Or, le produit $V_{\text{sphère}} * R_{g,p}^2$ pour une sphère pleine est égal à $\frac{4\pi R_p^3}{3} * \frac{3}{5} R_p^2 = \frac{4\pi R_p^5}{5}$.

On retrouve bien la valeur $V_{\text{sphère}} * R_{g,p}^2$ correspondant à une sphère pleine.

Comme pour le cas précédent, $R_{g,\text{calotte}} = \sqrt{\frac{3}{10} \frac{(5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}{h^2(3R-h)}}$.

En résumé :

L'expression du rayon de giration d'une sphère est $R_{g,\text{sphère}} = \sqrt{\frac{3}{5}} R_{\text{sphère}}$.

L'expression du rayon de giration d'une calotte sphérique dont $h < 2R$ est :

$$R_{g,\text{calotte}} = \sqrt{\frac{3}{10} \frac{(5hR^4 - R^5 + (R-h)^5)}{h^2(3R-h)}}$$

$$\iiint_{V_{\text{sphère}}} r^2 dV = \frac{4\pi R^5}{5} \text{ pour une sphère pleine de rayon } R$$

$$\iiint_{V_{\text{calotte}}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5) \text{ pour une calotte sphérique dont } h < R$$

$$\iiint_{V_{\text{complémentaire}}} r^2 dV = \frac{\pi}{10} (5hR^4 - R^5 + (R-h)^5) \text{ pour une calotte sphérique dont } h \geq R$$

Expression du rayon de giration d'un agrégat polydispersé en taille de monomères en recouvrement sans gangue au niveau du contact entre eux :

$$R_g^2 = \frac{1}{V} \iiint_V r^2 dV$$

$$VR_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} r^2 dV$$

$$VR_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} (\overrightarrow{OO_i} + \overrightarrow{O_iM})^2 dV$$

$$VR_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \underbrace{\overrightarrow{OO_i}^2}_{L_i^2} dV + \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \underbrace{2 \overrightarrow{OO_i} \cdot \overrightarrow{O_iM}}_{\|\overrightarrow{OO_i}\| \|\overrightarrow{O_iM}\| \cos(\overrightarrow{OO_i}, \overrightarrow{O_iM})} dV + \sum_{i=1}^{N_p} \underbrace{\iiint_{V_i} \overrightarrow{O_iM}^2 dV}_{V_i R_{g,i}^2}$$

$$VR_g^2 = \sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 \iiint_{V_i} dV - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 \iiint_{V_{ij}} dV + 2 \sum_{i=1}^{N_p} L_i \iiint_{V_i} \|\overrightarrow{O_i M}\| \cos(\overrightarrow{OO_i}, \overrightarrow{O_i M}) dV + \sum_{i=1}^{N_p} \iiint_{V_i} \overrightarrow{O_i M}^2 dV - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} \iiint_{V_{ij}} \overrightarrow{O_i M}^2 dV$$

On suppose que le terme $2 \sum_{i=1}^{N_p} L_i \iiint_{V_i} \|\overrightarrow{O_i M}\| \cos(\overrightarrow{OO_i}, \overrightarrow{O_i M}) dV$ est nul.

$$\begin{aligned} VR_g^2 &= \sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 V_{ij} + \sum_{i=1}^{N_p} V_i R_{g,i}^2 - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} R_{g,ij}^2 \\ R_g^2 &= \frac{1}{V} \left(\sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 V_{ij} + \sum_{i=1}^{N_p} V_i R_{g,i}^2 - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} R_{g,ij}^2 \right) \\ R_g^2 &= \frac{1}{V} \left(\sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 V_i + \sum_{i=1}^{N_p} R_{g,i}^2 V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} R_{g,ij}^2 \right) \\ R_g &= \sqrt{\frac{1}{V} \left(\sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 V_i + \sum_{i=1}^{N_p} R_{g,i}^2 V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 V_{ij} - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} R_{g,ij}^2 \right)} \\ R_g &= \sqrt{\frac{1}{V} (E + F - G - H)} \end{aligned}$$

$$E = \sum_{i=1}^{N_p} L_i^2 V_i$$

$$F = \sum_{i=1}^{N_p} R_{g,i}^2 V_i$$

$$G = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} L_i^2 V_{ij}$$

$$H = \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij} R_{g,ij}^2$$

V_i est le volume de la $i^{ème}$ sphère, V_{ij} est le volume d'intersection entre la sphère i et la sphère j , $R_{g,i}$ est le rayon de giration de la $i^{ème}$ sphère, $R_{g,ij}$ est le rayon de giration de la portion formée par l'intersection de la sphère i et de la sphère j , V est le volume de l'agrégat.

Annexe 6 : Définition d'un autre paramètre de recouvrement

Un autre taux de recouvrement volumique 3D peut être spécifié. Il se note τ_v et se calcule comme le rapport entre le volume d'intersection total de l'agrégat et son volume réel. Soit :

$$\tau_v = \frac{\sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}}{\sum_{i=1}^{N_p} V_i - \sum_{i=1}^{N_p} \sum_{j=1}^{i-1} V_{ij}}$$

N_p est le nombre de particules primaires constituant l'agrégat. Le volume d'intersection total de l'agrégat est égal à la somme des volumes d'intersection V_{ij} entre chaque couple (i, j) de monomères en superposition au sein de l'agrégat. Le volume réel de l'agrégat, c'est-à-dire son volume réévalué, est égal à la différence entre la somme des volumes des i monomères considérés sphériques de l'agrégat et la somme des volumes d'intersection V_{ij} entre chaque couple (i, j) de monomères en superposition au sein de l'agrégat. À noter que c'est exactement de cette manière que le taux de recouvrement volumique 3D est implémenté dans le programme.

Un taux de recouvrement volumique 3D égal à 0 signifie que le recouvrement au sein de l'agrégat est nul. Les particules primaires sont uniquement en contact ponctuel. Autrement dit, la croissance de surface des particules primaires est inexistante. Ce taux de recouvrement volumique 3D n'a pas de limite supérieure. Il s'avère que l'utilisation de ce paramètre n'est pas un choix très judicieux car il n'y a aucun moyen de le comparer avec la littérature. Peu d'interprétation physique peut être faite si ce n'est que plus ce taux est élevé plus le recouvrement est fort.