

Dynamique d'une particule aérosol organique à l'aide d'un système d'équations algébriques et différentielles ordinaires

Chantal Landry et Jacques Rappaz

Institut d'Analyse et Calcul Scientifique,
Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne,
1015 Lausanne, Suisse

collaboration avec A. Caboussat et J. He, Département de mathématiques, Université de Houston, USA

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Introduction

Définition d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux ;
- contient sulfate, ammonium, nitrate, sodium, chlorure, métaux, éléments carbonés, poussières et eau ;
- variation du diamètre : $10^{-3} - 10^2 \mu\text{m}$;
- changement en taille et composition par :
 - condensation/évaporation,
 - coagulation ,
 - réaction chimique,
 - activation ;
- concentration :
 - diamètre $\leq 1 \mu\text{m}$: $10 - 10^4 \text{cm}^{-3}$,
 - diamètre $> 1 \mu\text{m}$: $< 1 \text{cm}^{-3}$;
- impacts néfastes sur : santé, visibilité, couche d'ozone et équilibre du rayonnement terrestre.

Définition d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux ;
- contient sulfate, ammonium, nitrate, sodium, chlorure, métaux, éléments carbonés, poussières et eau ;
- variation du diamètre : $10^{-3} - 10^2 \mu m$;
- changement en taille et composition par :
 - condensation/évaporation,
 - coagulation ,
 - réaction chimique,
 - activation ;
- concentration :
 - diamètre $\leq 1 \mu m$: $10 - 10^4 cm^{-3}$,
 - diamètre $> 1 \mu m$: $< 1 cm^{-3}$;
- impacts néfastes sur : santé, visibilité, couche d'ozone et équilibre du rayonnement terrestre.

Définition d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux ;
- contient sulfate, ammonium, nitrate, sodium, chlorure, métaux, éléments carbonés, poussières et eau ;
- variation du diamètre : $10^{-3} - 10^2 \mu m$;
- changement en taille et composition par :
 - condensation/évaporation,
 - coagulation ,
 - réaction chimique,
 - activation ;
- concentration :
 - diamètre $\leq 1 \mu m$: $10 - 10^4 cm^{-3}$,
 - diamètre $> 1 \mu m$: $< 1 cm^{-3}$;
- impacts néfastes sur : santé, visibilité, couche d'ozone et équilibre du rayonnement terrestre.

Définition d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux ;
- contient sulfate, ammonium, nitrate, sodium, chlorure, métaux, éléments carbonés, poussières et eau ;
- variation du diamètre : $10^{-3} - 10^2 \mu m$;
- changement en taille et composition par :
 - condensation/évaporation,
 - coagulation ,
 - réaction chimique,
 - activation ;
- concentration :
 - diamètre $\leq 1 \mu m$: $10 - 10^4 cm^{-3}$,
 - diamètre $> 1 \mu m$: $< 1 cm^{-3}$;
- impacts néfastes sur : santé, visibilité, couche d'ozone et équilibre du rayonnement terrestre.

Définition d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux ;
- contient sulfate, ammonium, nitrate, sodium, chlorure, métaux, éléments carbonés, poussières et eau ;
- variation du diamètre : $10^{-3} - 10^2 \mu m$;
- changement en taille et composition par :
 - condensation/évaporation,
 - coagulation ,
 - réaction chimique,
 - activation ;
- concentration :
 - diamètre $\leq 1 \mu m$: $10 - 10^4 cm^{-3}$,
 - diamètre $> 1 \mu m$: $< 1 cm^{-3}$;
- impacts néfastes sur : santé, visibilité, couche d'ozone et équilibre du rayonnement terrestre.

Définition d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux ;
- contient sulfate, ammonium, nitrate, sodium, chlorure, métaux, éléments carbonés, poussières et eau ;
- variation du diamètre : $10^{-3} - 10^2 \mu m$;
- changement en taille et composition par :
 - condensation/évaporation,
 - coagulation ,
 - réaction chimique,
 - activation ;
- concentration :
 - diamètre $\leq 1 \mu m$: $10 - 10^4 cm^{-3}$,
 - diamètre $> 1 \mu m$: $< 1 cm^{-3}$;
- impacts néfastes sur : santé, visibilité, couche d'ozone et équilibre du rayonnement terrestre.

Aérosol organique

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- contient C , H , O et N
- principalement émission anthropogène

plusieurs phases liquides

Molécules	b	Liquide I	Liquide II
$C_6H_{12}O_2$	0.50	0.083	0.999
H_2O	0.50	0.917	0.001
Proportion		0.545	0.455

TAB.: Exemple d'un aérosol contenant 2 phases liquides

Hypothèses

- particule sphérique
- uniquement évaporation/condensation

Aérosol organique

- contient C , H , O et N
- principalement émission anthropogène

plusieurs phases liquides

Molécules	b	Liquide I	Liquide II
$C_6H_{12}O_2$	0.50	0.083	0.999
H_2O	0.50	0.917	0.001
Proportion		0.545	0.455

TAB.: Exemple d'un aérosol contenant 2 phases liquides

Hypothèses

- particule sphérique
- uniquement évaporation/condensation

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Aérosol organique

- contient C , H , O et N
- principalement émission anthropogène

plusieurs phases liquides

Molécules	b	Liquide I	Liquide II
$C_6H_{12}O_2$	0.50	0.083	0.999
H_2O	0.50	0.917	0.001
Proportion		0.545	0.455

TAB.: Exemple d'un aérosol contenant 2 phases liquides

Hypothèses

- particule sphérique
- uniquement évaporation/condensation

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

But

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

On note :

- c_g^∞ : la concentration du gaz à l'état stationnaire,
- c_g^{surf} : la concentration du gaz à la surface de la particule,
- \mathbf{b} : le vecteur de concentration dans l'aérosol,
- R : le rayon de l'aérosol.

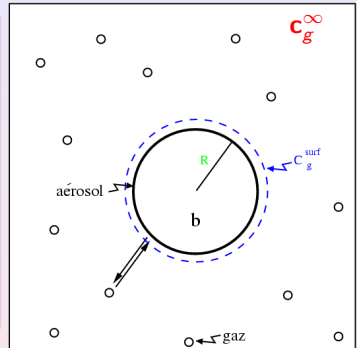


FIG.: Schéma gaz-aérosol.

But

Développer un modèle numérique efficace pour simuler l'évolution en taille et composition d'une particule aérosol organique.

But

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

On note :

- c_g^∞ : la concentration du gaz à l'état stationnaire,
- c_g^{surf} : la concentration du gaz à la surface de la particule,
- \mathbf{b} : le vecteur de concentration dans l'aérosol,
- R : le rayon de l'aérosol.

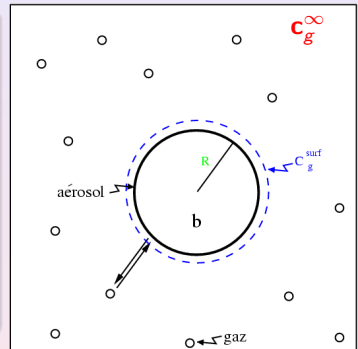


FIG.: Schéma gaz-aérosol.

But

Développer un modèle numérique efficace pour simuler l'évolution en taille et composition d'une particule aérosol organique.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Dynamique d'un aérosol organique

Flux de masse

Flux de masse

$$j_i = 4\pi R D_i \frac{(c_{g,i}^\infty - c_{g,i}^{surf})}{\frac{\lambda}{\alpha_i R} + 1} =: h_i(R) (c_{g,i}^\infty - c_{g,i}^{surf}),$$

où :

- D_i est la diffusivité de la particule de gaz i ,
- $c_{g,i}^\infty$ est sa concentration dans le milieu gazeux à l'état stationnaire,
- $c_{g,i}^{surf}$ est sa concentration à la surface de l'aérosol,
- λ est le chemin libre moyen de l'air,
- α_i est le coefficient d'accomodation de i sur la particule.

Remarque

Ne tient pas compte de la courbure de l'aérosol. Sinon, on devrait noter $(c_{g,i}^\infty - \eta c_{g,i}^{surf})$ où η est la constante de Kelvin.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Flux de masse

Flux de masse

$$j_i = 4\pi R D_i \frac{(c_{g,i}^\infty - c_{g,i}^{surf})}{\frac{\lambda}{\alpha_i R} + 1} =: h_i(R) (c_{g,i}^\infty - c_{g,i}^{surf}),$$

où :

- D_i est la diffusivité de la particule de gaz i ,
- $c_{g,i}^\infty$ est sa concentration dans le milieu gazeux à l'état stationnaire,
- $c_{g,i}^{surf}$ est sa concentration à la surface de l'aérosol,
- λ est le chemin libre moyen de l'air,
- α_i est le coefficient d'accomodation de i sur la particule.

Remarque

Ne tient pas compte de la courbure de l'aérosol. Sinon, on devrait noter $(c_{g,i}^\infty - \eta c_{g,i}^{surf})$ où η est la constante de Kelvin.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système d'équations différentielles ordinaires

Système d'équations différentielles ordinaires

$$\frac{d}{dt} \mathbf{c}_g^\infty = -\mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} \mathbf{b} = \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} R = \frac{1}{3} \frac{R}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}} \mathbf{m}_c^T \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R),$$

où \mathbf{m}_c est le vecteur des poids moléculaires.

Remarque :

$$\text{Résolution analytique : } R(t) = \frac{R_0}{(\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}_0)^{\frac{1}{3}}} (\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}(t))^{\frac{1}{3}},$$

où R_0 est le rayon initial de l'aérosol et \mathbf{b}_0 est le vecteur de concentration initial.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système d'équations différentielles ordinaires

Système d'équations différentielles ordinaires

$$\frac{d}{dt} \mathbf{c}_g^\infty = -\mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} \mathbf{b} = \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} R = \frac{1}{3} \frac{R}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}} \mathbf{m}_c^T \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R),$$

où \mathbf{m}_c est le vecteur des poids moléculaires.

Remarque :

$$\text{Résolution analytique : } R(t) = \frac{R_0}{(\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}_0)^{\frac{1}{3}}} (\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}(t))^{\frac{1}{3}},$$

où R_0 est le rayon initial de l'aérosol et \mathbf{b}_0 est le vecteur de concentration initial.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

L'équilibre chimique interne

Minimisation de l'énergie de Gibbs

Equilibre chimique interne :

$$\begin{aligned} \min \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_{\pi}} y_{\alpha} g(\mathbf{x}_{\alpha}) \\ \text{s.t.} \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_{\pi}} y_{\alpha} \mathbf{x}_{\alpha} = \mathbf{b} \\ & y_{\alpha} \geq 0, \quad \mathbf{e}^T \mathbf{x}_{\alpha} = 1, \quad \mathbf{x}_{\alpha} > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_{\pi}; \end{aligned}$$

où

- $y_{\alpha} \in \mathbb{R}_+$: le nombre total de moles dans la phase α ,
- $\mathbf{x}_{\alpha} \in \mathbb{R}_+^{n_s}$: le vecteur de composition de chaque phase α ,
- n_{π} : le nombre de phases liquides,
- $\mathbf{e} = (1, \dots, 1)^T$,
- g : énergie de Gibbs (UNIFAC, *Fredenslund, Gmehling, Rasmussen, 1977 & 1982*).

⇒ problème de minimisation à contraintes mixtes.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Minimisation de l'énergie de Gibbs

Equilibre chimique interne :

$$\begin{aligned} \min \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_{\pi}} y_{\alpha} g(\mathbf{x}_{\alpha}) \\ \text{s.t.} \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_{\pi}} y_{\alpha} \mathbf{x}_{\alpha} = \mathbf{b} \\ & y_{\alpha} \geq 0, \quad \mathbf{e}^T \mathbf{x}_{\alpha} = 1, \quad \mathbf{x}_{\alpha} > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_{\pi}; \end{aligned}$$

où

- $y_{\alpha} \in \mathbb{R}_+$: le nombre total de moles dans la phase α ,
- $\mathbf{x}_{\alpha} \in \mathbb{R}_+^{n_s}$: le vecteur de composition de chaque phase α ,
- n_{π} : le nombre de phases liquides,
- $\mathbf{e} = (1, \dots, 1)^T$,
- g : énergie de Gibbs (UNIFAC, *Fredenslund, Gmehling, Rasmussen, 1977 & 1982*).

⇒ problème de minimisation à contraintes mixtes.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Problème de la barrière

Impose une pénalité sur la contrainte $y_\alpha \geq 0$

Problème de la barrière

$$\begin{aligned} \min \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha g(\mathbf{x}_\alpha) - \nu \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} \ln(s_\alpha) \\ \text{s.t.} \quad & \mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi; \\ & \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b}, \\ & y_\alpha - s_\alpha = 0, \quad s_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi; \end{aligned}$$

où ν est un paramètre positif.

⇒ problème de minimisation avec contraintes d'égalités.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Problème de la barrière

Impose une pénalité sur la contrainte $y_\alpha \geq 0$

Problème de la barrière

$$\begin{aligned} \min \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha g(\mathbf{x}_\alpha) - \nu \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} \ln(s_\alpha) \\ \text{s.t.} \quad & \mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi; \\ & \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b}, \\ & y_\alpha - s_\alpha = 0, \quad s_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi; \end{aligned}$$

où ν est un paramètre positif.

⇒ problème de minimisation avec contraintes d'égalités.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Problème de la barrière

Impose une pénalité sur la contrainte $y_\alpha \geq 0$

Problème de la barrière

$$\begin{aligned} \min \quad & \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha g(\mathbf{x}_\alpha) - \nu \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} \ln(s_\alpha) \\ \text{s.t.} \quad & \mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi; \\ & \sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b}, \\ & y_\alpha - s_\alpha = 0, \quad s_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi; \end{aligned}$$

où ν est un paramètre positif.

⇒ problème de minimisation avec contraintes d'égalités.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système de Karush-Kuhn-Tucker

Conditions de premier ordre de Karush-Kuhn-Tucker

$$y_\alpha (\nabla g(\mathbf{x}_\alpha) + \boldsymbol{\lambda}) + \zeta_\alpha \mathbf{e} = \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$g(\mathbf{x}_\alpha) + \boldsymbol{\lambda}^T \mathbf{x}_\alpha - \theta_\alpha = 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b},$$

$$\theta_\alpha y_\alpha - \nu = 0, \quad \theta_\alpha > 0, \quad y_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi;$$

où $\boldsymbol{\lambda}$, ζ_α et θ_α sont les variables duales.

Résout avec la méthode de Newton.

Comme la fonction objective et les contraintes sont continues, la solution converge vers celle du problème initial lorsque $\nu \rightarrow 0$.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions

But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système de Karush-Kuhn-Tucker

Conditions de premier ordre de Karush-Kuhn-Tucker

$$y_\alpha (\nabla g(\mathbf{x}_\alpha) + \boldsymbol{\lambda}) + \zeta_\alpha \mathbf{e} = \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$g(\mathbf{x}_\alpha) + \boldsymbol{\lambda}^T \mathbf{x}_\alpha - \theta_\alpha = 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b},$$

$$\theta_\alpha y_\alpha - \nu = 0, \quad \theta_\alpha > 0, \quad y_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi;$$

où $\boldsymbol{\lambda}$, ζ_α et θ_α sont les variables duales.

Résout avec la méthode de Newton.

Comme la fonction objective et les contraintes sont continues, la solution converge vers celle du problème initial lorsque $\nu \rightarrow 0$.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinares

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système de Karush-Kuhn-Tucker

Conditions de premier ordre de Karush-Kuhn-Tucker

$$y_\alpha (\nabla g(\mathbf{x}_\alpha) + \boldsymbol{\lambda}) + \zeta_\alpha \mathbf{e} = \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$g(\mathbf{x}_\alpha) + \boldsymbol{\lambda}^T \mathbf{x}_\alpha - \theta_\alpha = 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\sum_{\alpha=1}^{n_\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b},$$

$$\theta_\alpha y_\alpha - \nu = 0, \quad \theta_\alpha > 0, \quad y_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi;$$

où $\boldsymbol{\lambda}$, ζ_α et θ_α sont les variables duales.

Résout avec la méthode de Newton.

Comme la fonction objective et les contraintes sont continues, la solution converge vers celle du problème initial lorsque $\nu \rightarrow 0$.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Calcul de c_g^{surf}

Pour $i = 1, \dots, n_\pi$, on a :

- loi des gaz parfaits :

$$c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} p_{g,i}^{surf},$$

où \mathcal{R} est la constante des gaz parfaits et T est la température ;

- propriété chimique :

$$p_{g,i}^{surf} = a_i p_{g,i}^o,$$

où $p_{g,i}^o$ est la pression de vapeur et a_i est l'activité ;

- propriété algébrique :

$$\ln(a_i) = -\lambda_i,$$

$$\Rightarrow c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} \exp(-\lambda_i + \ln(p_{g,i}^o)).$$

Calcul de c_g^{surf}

Pour $i = 1, \dots, n_\pi$, on a :

- loi des gaz parfaits :

$$c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} p_{g,i}^{surf},$$

où \mathcal{R} est la constante des gaz parfaits et T est la température ;

- propriété chimique :

$$p_{g,i}^{surf} = a_i p_{g,i}^o,$$

où $p_{g,i}^o$ est la pression de vapeur et a_i est l'activité ;

- propriété algébrique :

$$\ln(a_i) = -\lambda_i,$$

$$\Rightarrow c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} \exp(-\lambda_i + \ln(p_{g,i}^o)).$$

Calcul de c_g^{surf}

Pour $i = 1, \dots, n_\pi$, on a :

- loi des gaz parfaits :

$$c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} p_{g,i}^{surf},$$

où \mathcal{R} est la constante des gaz parfaits et T est la température ;

- propriété chimique :

$$p_{g,i}^{surf} = a_i p_{g,i}^o,$$

où $p_{g,i}^o$ est la pression de vapeur et a_i est l'activité ;

- propriété algébrique :

$$\ln(a_i) = -\lambda_i,$$

$$\Rightarrow c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} \exp(-\lambda_i + \ln(p_{g,i}^o)).$$

Calcul de c_g^{surf}

Pour $i = 1, \dots, n_\pi$, on a :

- loi des gaz parfaits :

$$c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} p_{g,i}^{surf},$$

où \mathcal{R} est la constante des gaz parfaits et T est la température ;

- propriété chimique :

$$p_{g,i}^{surf} = a_i p_{g,i}^o,$$

où $p_{g,i}^o$ est la pression de vapeur et a_i est l'activité ;

- propriété algébrique :

$$\ln(a_i) = -\lambda_i,$$

$$\Rightarrow c_{g,i}^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} \exp(-\lambda_i + \ln(p_{g,i}^o)).$$

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Systeme d'équations algébriques et différentielles ordinaires

Système à résoudre

- Partie différentielle ordinaire :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{c}_g^\infty = -\mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} \mathbf{b} = \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} R = \frac{1}{3} \frac{R}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}} \mathbf{m}_c^T \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

- Couplage : $\mathbf{c}_g^{surf} = \frac{1}{RT} \exp(-\lambda + \ln(\mathbf{p}_g^o))$
- Partie algébrique :

$$y_\alpha (\nabla g(\mathbf{x}_\alpha) + \lambda) + \zeta_\alpha \mathbf{e} = \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$g(\mathbf{x}_\alpha) + \lambda^T \mathbf{x}_\alpha - \theta_\alpha = 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\sum_{\alpha=1}^{\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b},$$

$$y_\alpha \theta_\alpha - \nu = 0, \quad y_\alpha > 0, \quad \theta_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi.$$

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système à résoudre

- Partie différentielle ordinaire :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{c}_g^\infty = -\mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} \mathbf{b} = \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} R = \frac{1}{3} \frac{R}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}} \mathbf{m}_c^T \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

- Couplage : $\mathbf{c}_g^{surf} = \frac{1}{RT} \exp(-\lambda + \ln(\mathbf{p}_g^o))$
- Partie algébrique :

$$y_\alpha (\nabla g(\mathbf{x}_\alpha) + \lambda) + \zeta_\alpha \mathbf{e} = \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$g(\mathbf{x}_\alpha) + \lambda^T \mathbf{x}_\alpha - \theta_\alpha = 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\sum_{\alpha=1}^{\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b},$$

$$y_\alpha \theta_\alpha - \nu = 0, \quad y_\alpha > 0, \quad \theta_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi.$$

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Système à résoudre

- Partie différentielle ordinaire :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{c}_g^\infty = -\mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} \mathbf{b} = \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

$$\frac{d}{dt} R = \frac{1}{3} \frac{R}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}} \mathbf{m}_c^T \mathbf{j}(\mathbf{c}_g^\infty, \mathbf{c}_g^{surf}, R)$$

- Couplage : $\mathbf{c}_g^{surf} = \frac{1}{\mathcal{R}T} \exp(-\lambda + \ln(\mathbf{p}_g^o))$
- Partie algébrique :

$$y_\alpha (\nabla g(\mathbf{x}_\alpha) + \lambda) + \zeta_\alpha \mathbf{e} = \mathbf{0}, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$g(\mathbf{x}_\alpha) + \lambda^T \mathbf{x}_\alpha - \theta_\alpha = 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\mathbf{e}^T \mathbf{x}_\alpha = 1, \quad \mathbf{x}_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi,$$

$$\sum_{\alpha=1}^{\pi} y_\alpha \mathbf{x}_\alpha = \mathbf{b},$$

$$y_\alpha \theta_\alpha - \nu = 0, \quad y_\alpha > 0, \quad \theta_\alpha > 0, \quad \alpha = 1, \dots, n_\pi.$$

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Résolution numérique du DAE-système

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Méthode d'Euler implicite

A chaque pas de temps $n \geq 0$, on doit résoudre le système non-linéaire :

$$\mathbf{c}_g^{\infty, n+1} = (\mathbf{I} + \tau \mathbf{h}(R^{n+1}))^{-1} (\mathbf{c}_g^{\infty, n} + \tau \mathbf{h}(R^{n+1}) \mathbf{c}_g^{surf, n+1});$$

$$\mathbf{b}^{n+1} = \mathbf{b}^n + \tau \mathbf{h}(R^{n+1}) (\mathbf{c}_g^{\infty, n+1} - \mathbf{c}_g^{surf, n+1});$$

$$R^{n+1} = R_0 \left(\frac{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}^{n+1}}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}_0} \right)^{1/3};$$

$$\mathbf{c}_g^{surf, n+1} = \frac{1}{\mathcal{R}T} p_g^{surf}(\mathbf{b}^{n+1});$$

où τ est le pas de temps.

Ce système est vu comme un problème de point-fixe.

Résolution numérique du DAE-système

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Méthode d'Euler implicite

A chaque pas de temps $n \geq 0$, on doit résoudre le système non-linéaire :

$$\mathbf{c}_g^{\infty, n+1} = (\mathbf{I} + \tau \mathbf{h}(R^{n+1}))^{-1} (\mathbf{c}_g^{\infty, n} + \tau \mathbf{h}(R^{n+1}) \mathbf{c}_g^{surf, n+1});$$

$$\mathbf{b}^{n+1} = \mathbf{b}^n + \tau \mathbf{h}(R^{n+1}) (\mathbf{c}_g^{\infty, n+1} - \mathbf{c}_g^{surf, n+1});$$

$$R^{n+1} = R_0 \left(\frac{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}^{n+1}}{\mathbf{m}_c^T \mathbf{b}_0} \right)^{1/3};$$

$$\mathbf{c}_g^{surf, n+1} = \frac{1}{\mathcal{R}T} p_g^{surf}(\mathbf{b}^{n+1});$$

où τ est le pas de temps.

Ce système est vu comme un problème de point-fixe.

Difficultés

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- Discontinuité du flux de masse j dû à la **discontinuité de λ** lorsque le nombre de phases liquides change.
- **Détection** de l'instant où le nombre de phases liquides change.
- Problème de minimisation : trouver le **minimum global** et non un minimum local.
- **Initialisation** de l'algorithme de Newton pour le problème de minimisation.

Difficultés

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase
Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- Discontinuité du flux de masse j dû à la **discontinuité de λ** lorsque le nombre de phases liquides change.
- **Détection** de l'instant où le nombre de phases liquides change.
- Problème de minimisation : trouver le **minimum global** et non un minimum local.
- **Initialisation** de l'algorithme de Newton pour le problème de minimisation.

Difficultés

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- Discontinuité du flux de masse j dû à la **discontinuité de λ** lorsque le nombre de phases liquides change.
- **Détection** de l'instant où le nombre de phases liquides change.
- Problème de minimisation : trouver le **minimum global** et non un minimum local.
- **Initialisation** de l'algorithme de Newton pour le problème de minimisation.

Difficultés

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

- Discontinuité du flux de masse j dû à la **discontinuité de λ** lorsque le nombre de phases liquides change.
- **Détection** de l'instant où le nombre de phases liquides change.
- Problème de minimisation : trouver le **minimum global** et non un minimum local.
- **Initialisation** de l'algorithme de Newton pour le problème de minimisation.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Résultats numériques

Diagramme de phase

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction
Définitions
But
Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

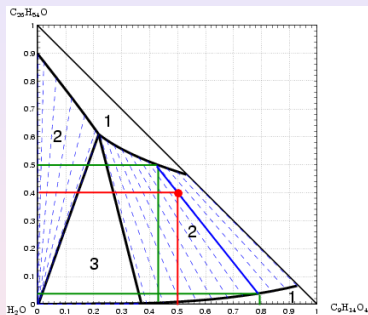
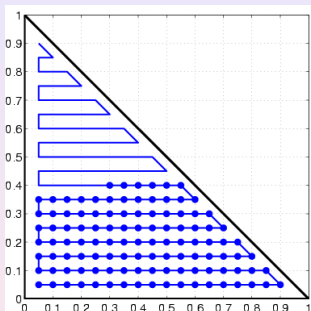
Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives



1-hexacosanol/acide pinique/eau
pression = 1 atm, température = 298 K

$$\mathbf{b} = (0.4, 0.5, 0.1)^T, \quad \mathbf{x}_1 = (0.04, 0.78, 0.18)^T, \quad \mathbf{x}_2 = (0.5, 0.42, 0.08)^T, \\ y_1 = 0.22 \text{ et } y_2 = 0.78$$

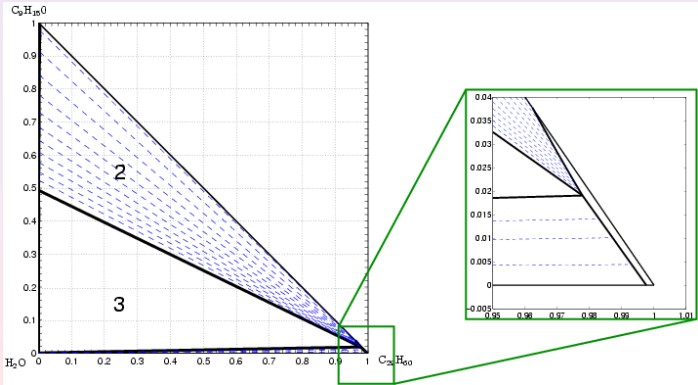
Temps CPU : < 3s pour une grille 100×100.
(Intel Pentium 4, 3.20 GHz)

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

- Introduction
- Définitions
- But
- Dynamique d'un
aérosol organique
- Equilibre
chimique interne
- Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires
- Résultats
numériques
- Diagramme de
phase
- Evolution
temporelle d'un
aérosol
- Conclusions et
perspectives

Système ternaire : acide pinonique/nonacosane/eau

pression = 1 atm, température = 298 K

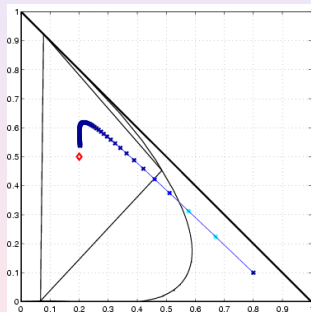
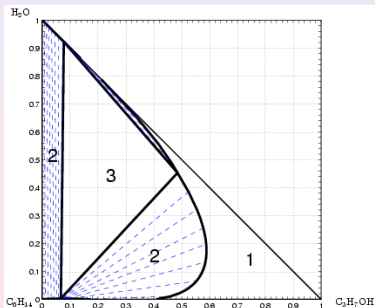


Temps CPU : 1.7s pour une grille 100x100.

Evolution temporelle d'un aérosol

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Système ternaire : eau/propanol/hexane
pression = 1 atm, température = 311 K



Temps *CPU* pour le diagramme de phase : < 5s pour une grille
100×100.

Temps *CPU* pour l'évolution temporelle : < 2s.

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Conclusions et perspectives

Conclusions et perspectives

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Conclusions

- méthode performante pour la construction des diagrammes de phases,
- dynamique de la particule en accord avec les diagrammes de phases,
- dynamique de la particule rapide à calculer.

Perspectives

- considérer plusieurs particules aérosols,
- utiliser une méthode de plus grand ordre,
- développer une méthode efficace pour la détection des changements du nombre de phases liquides.

Conclusions et perspectives

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Conclusions

- méthode performante pour la construction des diagrammes de phases,
- dynamique de la particule en accord avec les diagrammes de phases,
- dynamique de la particule rapide à calculer.

Perspectives

- considérer plusieurs particules aérosols,
- utiliser une méthode de plus grand ordre,
- développer une méthode efficace pour la détection des changements du nombre de phases liquides.

Chantal Landry
et Jacques
Rappaz

Introduction

Définitions
But

Dynamique d'un
aérosol organique

Equilibre
chimique interne

Système
d'équations
algébriques et
différentielles
ordinaires

Résultats
numériques

Diagramme de
phase

Evolution
temporelle d'un
aérosol

Conclusions et
perspectives

Merci de votre attention