

Titre de la thèse :

# Réactions chimiques en milieu turbulent : étude numérique (simulation numérique directe) et comparaison avec des données marines in situ

Laboratoire d'accueil: UMR LOG 8187

Directeur de thèse: François Schmitt (LOG)

Co-directeur de thèse : Lipo Wang (Shanghai Jiaotong University) (cotutelle)

Co-encadrant : Enrico Calzavarini (LML)

Domaine scientifique : turbulence, océanographie physique

## Résumé.

Dans la nature, que ce soit au niveau océanique ou atmosphérique, les fluides sont presque tous dans un état de turbulence. Dans l'océan, les quantités transportées comme la température, la salinité, sont appelées des **scalaires passifs**, car ils n'ont pas en général d'interaction autre que via le transport par la vitesse turbulente. D'autres quantités sont également transportées par la vitesse turbulente : des **scalaires actifs**, qui peuvent être chimiquement ou biologiquement actifs. Leur activité demande des contacts au niveau moléculaire (chimie) ou au niveau des organismes (biologie). Sans ce contact, les réactions chimiques ou biologiques n'ont pas lieu. Le transport turbulent est nécessaire pour activer ce contact. Le **transport turbulent est donc fondamental pour comprendre les réactions chimiques** en milieu ouvert. Pour des réactions chimiques complexes (second ordre, et généralisations) ou pour des activités biologiques, il n'existe pas de résultat ou de proposition théorique décrivant leurs statistiques sous l'influence de la turbulence. Etant donnée l'importance du problème, cette lacune est un défi important à relever, qui est abordé ici par des approches numériques. L'objectif de l'étude est donc de réaliser des simulations DNS de la turbulence, en insérant des réactions chimiques du second ordre (dans un premier temps). L'analyse des données numériques fournira des résultats qui seront ensuite comparés aux données expérimentales in situ.

Ce sujet est très novateur et d'une grande portée potentielle : en effet, de très nombreuses réactions chimiques et biologiques ont lieu en milieu turbulent, non seulement dans l'océan, mais aussi dans l'atmosphère, et en milieu contrôlé industriel. Une meilleure connaissance du rôle de la turbulence dans ces réactions chimiques et biologiques est d'une grande importance théorique, pratique et potentiellement économique. Le thème de recherche proposé est pertinent pour la gestion et l'exploitation des ressources aquatiques, comme par exemple le contrôle des efflorescences algales nuisibles, la pêche et l'industrie alimentaire associée, et la prédiction de la dispersion de polluants réactifs suite à un déversement accidentel.

## Sujet et contexte

### Introduction.

Dans la nature, que ce soit au niveau océanique ou atmosphérique, les fluides sont presque tous dans un état de turbulence (caractérisée par un grand nombre de Reynolds  $Re = UL/\nu$ , où  $U$  est une vitesse,  $L$  une longueur et pour l'océan la viscosité cinématique vaut environ  $\nu \approx 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ ). Une des caractéristiques de la turbulence est de mélanger les quantités transportées de façon extrêmement plus efficace que la diffusion moléculaire (Monin et Yaglom, 1971). Dans l'océan, les quantités transportées comme la température, la salinité, sont appelées des **scalaires passifs**, car ils n'ont pas en général d'interaction autre que via le transport par la vitesse turbulente. D'autres quantités sont également transportées par la vitesse turbulente : des **scalaires actifs**, qui peuvent être chimiquement ou biologiquement actifs. Leur activité demande des contacts au niveau moléculaire (chimie) ou au niveau des organismes (biologie). Sans ce contact, les réactions chimiques ou biologiques n'ont pas lieu. Le transport turbulent est nécessaire pour activer ce contact. Le **transport turbulent est donc fondamental pour comprendre les réactions chimiques** en milieu ouvert.

### **Turbulence homogène et isotrope et réactions chimiques.**

En turbulence à grand nombre de Reynolds, la turbulence est multi-échelles, allant des plus petites échelles (mm pour la vitesse, microns pour les scalaires) vers les plus grandes (mètres, ou kilomètres). La turbulence est régie par les équations de Navier Stokes, qui sont fortement non-linéaires et non résolues mathématiquement. Une compréhension des fluctuations de la turbulence demande donc des outils adaptés. La situation de turbulence homogène et isotrope est généralement considérée : il s'agit, à la suite des propositions de A. N. Kolmogorov (Monin et Yaglom, 1971 ; Frisch, 1995), de considérer, loin des parois, les statistiques de la vitesse et des champs de scalaire. Dans un tel contexte, il est connu que les fluctuations des scalaires passifs obéissent à des lois d'échelle (Obukhov 1949, Corrsin, 1951) donnant lieu à un spectre d'énergie en  $-5/3$  sur toute la gamme d'échelle appelée régime inertiel.

Lorsque le scalaire présente une activité chimique, certaines études pour le cas le plus simple, correspondant à des réactions chimiques du premier ordre, ont prédit le nouveau spectre attendu (Corrsin 1961).

Par contre, pour des réactions chimiques plus complexes (second ordre, et généralisations) ou pour des activités biologiques, il n'existe pas de résultat ou de proposition théorique. Etant donnée l'importance du problème, cette lacune est un défi important à relever.

### **Position de la problématique.**

La turbulence n'est dans l'état actuel pas résoluble par une approche mathématique. En raison de la progression ces dernières années de la puissance des ordinateurs, il est maintenant possible de réaliser des simulations numériques directes (*Direct Numerical Simulations*, DNS) des équations de Navier-Stokes pour des nombres de Reynolds relativement importants. Ces nombres de Reynolds sont encore trop faibles pour correspondre aux écoulements naturels (atmosphère ou océan), mais ils peuvent fournir des

approches pour étudier et comprendre numériquement le comportement de la turbulence. Ceci permet en particulier d'inférer des lois statistiques, qui peuvent ensuite être comparées aux mesures in situ. Ceci a été réalisé pour des scalaires passifs dans des études antérieures (Kosaly, 1993 ; de Bruyn Kops et al., 2001) pour certaines réactions en relation avec le problème de la combustion. Nous proposons ici de développer nos travaux selon ces directions, avec un nombre de Reynolds plus élevé et en nous focalisant sur des réactions chimiques en milieu aqueux marin.

L'objectif de l'étude est donc de réaliser des simulations DNS de la turbulence, en insérant des réactions chimiques du second ordre (dans un premier temps). L'analyse des données numériques fournira des résultats qui seront ensuite comparés aux données expérimentales in situ.

### Description du sujet.

On considère une réaction chimique entre deux éléments A et B, donnant l'élément C. Cette réaction peut être numériquement modélisée par DNS en considérant (i) la vitesse (3 équations), (ii) le transport et réaction de l'élément A ; (iii) le transport et réaction de l'élément B ; (iv) le transport et réaction de l'élément C.

Dans un premier temps, pour simplifier le problème numérique, une réaction chimique pour laquelle le produit C est l'eau sera considérée :  $\text{H}_3\text{O}^+ + \text{OH}^- \leftrightarrow 2\text{H}_2\text{O}$ . Ceci ne donnera lieu qu'à 2 équations de scalaires actifs à considérer :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \phi_A}{\partial t} + u_i \frac{\partial \phi_A}{\partial x_i} &= D_A \Delta \phi_A - \mu_1 \phi_A \phi_B \\ \frac{\partial \phi_B}{\partial t} + u_i \frac{\partial \phi_B}{\partial x_i} &= D_B \Delta \phi_B - \mu_1 \phi_A \phi_B \end{aligned}$$

Ici  $A=[\text{H}_3\text{O}^+]$  et  $B=[\text{OH}^-]$ . Ces quantités donneront accès à la dynamique du  $pH = -\log_{10} A$ . Les mesures in situ du  $pH$  à haute fréquence dans le milieu marin seront comparées aux données issues de la DNS.

Ce cadre numérique sera alors généralisable à d'autres réactions non-linéaires dans un second temps. Le sujet proposé ici appartient à la turbulence fondamentale, et apporte des éléments importants pour la compréhension de la dynamique de paramètres biogéochimiques en milieu turbulent. Ce sujet très innovant vise donc à combler un vide dans plusieurs domaines, et peut potentiellement avoir de nombreuses applications et continuations.

### Approche numérique.

Nous visons à simuler une situation physique idéalisée, dans laquelle les réactants sont injectés dans le système par une source à grande échelle (comme par exemple un gradient scalaire moyen) et sont ensuite advectés par un écoulement réaliste de turbulence fluide. La turbulence, qui devra être statistiquement homogène et isotrope, sera également

généralisée par un mécanisme de forçage à grande échelle. Le domaine géométrique pour cette configuration sera un domaine cubique, périodique le long de chaque direction cartésienne. Le processus de réaction chimique dans la turbulence sera caractérisé par une hiérarchie d'échelles : la grande échelle d'injection du scalaire et du forçage fluide, les échelles du régime inertiel, l'échelle dissipative de l'écoulement fluide (échelle de Kolmogorov) et enfin l'échelle dissipative de réactants (échelle de Batchelor, cette dernière est la plus petite).

Nous prévoyons de simuler ce système-modèle au moyen d'un code numérique parallélisé se basant sur une approche Lattice-Boltzmann (Succi, 2001). Ce code, élaboré par l'un des co-encadrants (plus d'infos <http://www.ecalzavarini.info/research/tools/>), peut déjà gérer la dynamique simultanée d'un fluide et de deux champs scalaires. Le doctorant devra toutefois mettre en œuvre le calcul, relativement simple, des termes de réaction chimique scalaire dans le code de simulation.

Les simulations seront effectuées sur les machines du CALCULCO pour la partie française de la thèse, et les machines de l'Université Jiaotong de Shanghai pour la partie chinoise.

### **Etat du sujet dans les laboratoires**

- **LOG** : Le laboratoire d'Océanologie et de Géosciences est spécialisé dans les études interdisciplinaires du milieu marin. Parmi celles-ci, l'étude de la dynamique du milieu physique, et ses forçages sur les autres compartiments, en particulier chimique et biogéochimique. L'encadrant François Schmitt travaille depuis longtemps sur la turbulence de scalaire, et est spécialisé dans les approches et modèles invariants d'échelle, et la recherche de lois d'échelle pour différents champs passifs (température, salinité) et bio-géochimiquement actifs (fluorescence/phytoplancton, pH, oxygène dissous...).
- **Shanghai Jiaotong University**: Lipo Wang, co-directeur de la thèse sur la partie chinoise, est spécialisé dans les domaines de la turbulence numérique, en particulier dans les applications portant sur la combustion.
- **LML**: L'équipe « Fluides complexes et en interactions » du laboratoire de mécanique de Lille est engagée dans l'étude des milieux diphasiques (c'est-à-dire des milieux comportant plusieurs phases comme les liquides à bulles, les suspensions de particules, ...), de la modélisation de la turbulence dans les milieux complexes (des écoulements de fluides visco-élastiques), des instabilités hydrodynamiques, et de l'interaction fluide-structure. La recherche d'Enrico Calzavarini (MdC), co-encadrant de la thèse, porte sur les propriétés statistiques des écoulements turbulents, la convection thermique développée et le transport diphasique dans la turbulence. Il travaille sur la simulation numérique des écoulements turbulents en utilisant différentes méthodes numériques (Méthodes spectrales, volumes-finis, équation de Boltzmann sur réseau, ...).

### **Programme et échéancier**

Le doctorant recruté devra avoir un bagage solide en mécanique des fluides et en turbulence. Une expérience avec le numérique sera également bienvenue. Néanmoins les six premiers mois seront nécessaires pour s'approprier le sujet : compréhension théorique des modèles utilisés pour la turbulence homogène et isotrope en scalaires passifs et actifs, et compréhension de la structure et du fonctionnement du modèle de simulation numérique directe (DNS) des équations de Navier-Stokes disponible au laboratoire LML.

- **Année 1.** Premier semestre : familiarisation théorique et avec le modèle DNS. Le candidat sera initié au calcul scientifique, en particulier aux bases de la programmation parallèle, et à la manipulation et analyse de grands volumes de données. Second semestre : implémentation du code par une réaction chimique de second ordre.

- **Année 2.** Etude du cas de la réaction  $\text{H}_3\text{O}^+ + \text{OH}^- \leftrightarrow 2\text{H}_2\text{O}$  et de la dynamique du pH en milieu turbulent. Analyse/interprétation des résultats et rédaction d'un article. Comparaison avec des données expérimentales provenant du milieu marin in situ.

- **Année 3.** Extension vers d'autres réactions chimiques (oxygène dissous, nitrate). Cette phase peut nécessiter une modification plus étendue du code de simulation DNS existant : une troisième équation de la dynamique d'un scalaire sera ajoutée. Comparaison des nouveaux résultats avec des données du milieu marin. Rédaction d'un second article.

### **Retombées scientifiques attendues**

Ce sujet est très novateur et d'une grande portée potentielle : en effet, de très nombreuses réactions chimiques et biologiques ont lieu en milieu turbulent, non seulement dans l'océan, mais aussi dans l'atmosphère, et en milieu contrôlé industriel. Une meilleure connaissance du rôle de la turbulence dans ces réactions chimiques et biologiques est d'une grande importance théorique, pratique et potentiellement économique.

Le thème de recherche proposé est pertinent pour la gestion et l'exploitation des ressources aquatiques, comme par exemple le contrôle des efflorescences algales nuisibles, la pêche et l'industrie alimentaire associée, et la prédiction de la dispersion de polluants réactifs suite à un déversement accidentel.

### **Collaborations prévues**

Ce sujet est interdisciplinaire, impliquant des recherches en turbulence numérique, en mécanique des fluides et en océanographie. La thèse se déroulera en cotutelle entre l'ULCO et l'Université Jiaotong de Shanghai. Le séjour sera pour 18 mois en France et pour 18 mois en Chine (financement assuré et confirmé par un dossier joint au dossier). En France, il implique un co-encadrement entre le LML et le LOG, portant sur les aspects numériques (LML), les développements théoriques (LOG, LML) et les validations expérimentales (LOG).

Des chercheurs en écologie marine et du personnel technique du LOG seront mis à contribution pour la partie expérimentale in situ.

### **Références (10 max.)**

1. de Bruyn Kops S. M., Riley J.J., Kosaly G., 2001. Direct numerical simulation of reacting scalar mixing layers. *Phys. Fluids* 13, 1450-1465.
2. Corrsin S. 1951. On the spectrum of isotropic temperature fluctuations in an isotropic turbulence. *J. Appl. Phys.* 22, 469.
3. Corrsin S. 1961. The reactant concentration spectrum in turbulent mixing with first-order reaction. *J. Fluid Mech.* 11, 407-416.
4. Frisch U., 1995. *Turbulence, the legacy of A. N. Kolmogorov*, Cambridge University Press.
5. Kosaly G., 1993. Frequency spectra of reactant fluctuations in turbulent flows. *J. Fluid Mech.* 246, 489-502.
6. Monin A.S. and A. M. Yaglom, 1971. *Statistical Fluid Mechanics* vol. II, MIT Press.
7. Obukhov A. M. 1949. Structure of the temperature field in a turbulent flow. *Izv. Akad. Nauk SSSR Ser. Geog. I Geofiz.* 13, 58-69.
8. Schmitt F.G., et Y. Huang, 2016. *Stochastic analysis of scaling time series, from turbulence theory to applications*, Cambridge University Press.
9. Succi. S., 2001. *The lattice Boltzmann equation for fluid dynamics and beyond*, Oxford Univ. Press.
10. Shrestha S., Mompean G., Calzavarini E., 2016. Finite Volume vs. Streaming-based Lattice Boltzmann algorithm for fluid-dynamics simulations: a one-to-one accuracy and performance study, *Physical Review E*, in press. (<http://arxiv.org/abs/1505.03271>).

### **5) Mots clés (5 maximum)**

turbulence ; réactions chimiques ; océanologie ; polluants ; simulations numériques