

Étude d'un système chimique à retard

Grégory Vial *

15 mai 2009

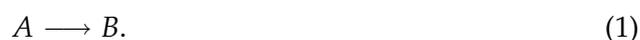
Résumé

On s'intéresse à une réaction chimique dans laquelle une partie des produits est réinjectée. La modélisation mathématique conduit à l'étude d'une équation différentielle à retard issue de la cinétique chimique. On considère la stabilité de ses points d'équilibre ainsi que la question de son approximation numérique. La présentation est librement inspirée de [3].

Mots-clés : Équations différentielles retardées, méthode de Runge-Kutta.

1 Réaction chimique avec recirculation

On considère un réacteur chimique où se produit la réaction



Au fur et à mesure de l'avancement de la réaction, on admet à l'entrée une solution de réactif A , dont la concentration est notée A_0 . Si on note $A(t)$ la concentration en le produit A au temps t , un modèle mathématique simple s'écrit

$$A'(t) = \alpha [A_0 - A(t)] - kA(t), \quad (2)$$

où k est la constante de la réaction (1) et α un paramètre lié au débit d'admission. La transformation du réactif A en le produit B n'est pas instantanée, si bien qu'à la sortie du réacteur, on retrouve une partie du produit A , non transformée. Afin d'améliorer le rendement de la réaction, on procède à une *recirculation*, voir Figure 1.

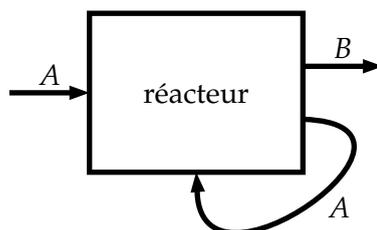


FIGURE 1 – Un réacteur chimique avec recirculation.

*Département de Mathématiques, ENS Cachan antenne de Bretagne, Campus de Ker-Lann, 35170 Bruz.
gregory.vial@bretagne.ens-cachan.fr

Le modèle (2) régissant l'évolution de $A(t)$ devient

$$A'(t) = \alpha [(1 - \lambda)A_0 + \lambda A(t - \tau) - A(t)] - kA(t), \quad (3)$$

où $\lambda \in [0, 1]$ désigne le taux de recirculation et τ le *retard* dû au transport dans la boucle de recirculation.

Lorsque τ est strictement positif, l'équation différentielle (3) ne relève pas de la théorie générale des équations différentielles ordinaires (EDO) car elle comporte le terme de retard $A(t - \tau)$. Toutefois, on peut utiliser les résultats sur les EDO pour étudier l'équation (3).

2 Étude d'équations différentielles retardées (EDR)

2.1 Existence et unicité

On se place dans le cas plus général

$$y'(t) = f(t, y(t), y(t - \tau)), \quad (4)$$

où f est une fonction continue sur $\mathbb{R}^+ \times \mathbb{R}^d \times \mathbb{R}^d$, satisfaisant l'hypothèse de Lipschitz suivante :

$$\exists L > 0, \forall t \in \mathbb{R}^+, \forall w \in \mathbb{R}^d, \forall z_1, z_2 \in \mathbb{R}^d, \quad \|f(t, z_1, w) - f(t, z_2, w)\| \leq L \|z_1 - z_2\|. \quad (5)$$

Théorème 1 Soit $\phi \in \mathcal{C}([-\tau, 0])$ une fonction donnée. Il existe une unique solution y au problème (4) telle que $y \in \mathcal{C}([-\tau, +\infty[) \cap \mathcal{C}^1([0, +\infty[)$ et

$$\forall t \in [-\tau, 0], \quad y(t) = \phi(t). \quad (6)$$

PREUVE. On raisonne *pas à pas*, sur des intervalles successifs de longueur τ .

Sur $[-\tau, 0]$, la fonction y est donnée par ϕ , d'après (6).

Sur $[0, \tau]$, on peut réécrire l'équation (4) comme

$$y'(t) = f(t, y(t), \phi(t - \tau)),$$

qui prend la forme d'une EDO $y'(t) = g(t, y(t))$ si on a posé

$$g(t, z) = f(t, z, \phi(t - \tau)).$$

L'hypothèse (5) permet de voir que la fonction g est lipschitzienne par rapport à sa seconde variable. Le théorème de Cauchy-Lipschitz permet de construire une solution $y \in \mathcal{C}^1([0, \tau])$. Notant $\psi(t) = y(t)$ pour t dans $[0, \tau]$, on peut recommencer l'étape précédente et obtenir une solution sur $[\tau, 2\tau]$. En itérant la procédure, on construit une solution $y \in \mathcal{C}^1([0, +\infty[)$. L'unicité provient aussi du théorème de Cauchy-Lipschitz. ■

REMARQUE.

- La démonstration précédente donne lieu naturellement à une méthode numérique, à partir d'une méthode quelconque d'intégration numérique des EDO, voir § 3.
- La condition initiale (6) est parfois appelée *condition initiale épaisse*.
- On peut déduire de l'idée de preuve précédente la positivité des solutions pour l'équation (3) pour une donnée initiale épaisse positive, à l'aide de la formule de variation de la constante :

$$\forall t \in [0, \tau], \quad A(t) = \phi(0)e^{-(k+\alpha)t} + \lambda \int_0^t [\alpha(1 - \lambda)A_0 + \phi(s - \tau)] e^{(k+\alpha)(s-t)} ds. \quad (7)$$

Cette formule peut aussi être utilisée pour l'approximation numérique. □

2.2 Stabilité des points d'équilibre

On revient au cas de l'EDR linéaire (3), et plus précisément à sa version homogène

$$A'(t) = -(k + \alpha)A(t) + \lambda A(t - \tau), \quad (8)$$

(à laquelle il est facile de se ramener). On pose $k' = k + \alpha$ et on assortit (8) de la condition initiale $A(t) = \phi(t)$ pour $t \in [-\tau, 0]$. La solution $A(t) \equiv 0$ est, bien sûr, point d'équilibre. En l'absence de retard – i.e. $\tau = 0$ – ce point est stable si $k' \geq \lambda$, asymptotiquement stable si $k' > \lambda$. On montre qu'il en va de même pour l'EDR que pour l'EDO.

Théorème 2 Si $k' \geq \lambda$ (resp. $k' > \lambda$), la solution triviale est stable (resp. asymptotiquement stable) pour l'EDR (8), quelle que soit la taille du retard τ .

PREUVE. On considère tout d'abord le cas $k' \geq \lambda$ et on introduit la fonction

$$V(t) = A(t)^2 + \lambda \int_{t-\tau}^t A(s)^2 ds.$$

Alors

$$V'(t) = 2A(t)A'(t) + \lambda (A(t)^2 - A(t - \tau)^2) \leq -2(k' - \lambda)A(t)^2. \quad (9)$$

Ainsi V est décroissante si bien que

$$A(t)^2 \leq V(t) \leq V(0) = \phi(0)^2 + \lambda \int_{-\tau}^0 \phi(s)^2 ds \leq (1 + \lambda\tau) \|\phi\|_{\infty, [0, \tau]}.$$

Ainsi, dès lors que

$$\|\phi\|_{\infty, [0, \tau]} \leq \sqrt{\frac{\varepsilon}{(1 + \lambda\tau)}},$$

la solution $A(t)$ reste bornée par ε pour tout temps.

Dans le cas $k' > \lambda$, supposant que $A(t)$ ne tend pas vers 0, il existe une suite t_n croissant vers $+\infty$, et $\delta > 0$ tels que $|A(t_n)| \geq \delta$. Par ailleurs, $A'(t)$ est bornée par M donc, en posant $\eta = \frac{\delta^2}{2M}$,

$$\forall t \in [t_n - \eta, t_n + \eta], \quad A(t)^2 \geq \frac{\delta^2}{2}.$$

L'inégalité (9) fournit alors $V'(t) \leq -\alpha$ avec $\alpha = (k' - \lambda)\delta^2 > 0$ pour $|t - t_n| \leq \eta$. Il s'ensuit que

$$V(t_n + \eta) \leq V(t_n) - \alpha\eta.$$

Par récurrence immédiate, $V(t_n + \eta) \leq V(0) - n\alpha\eta$, qui contredit la positivité de V . On a donc montré la stabilité asymptotique. ■

3 Approximation numérique

La démonstration *pas à pas* donnée au paragraphe 2.1 fournit naturellement une méthode numérique du calcul de la solution de l'EDR avec condition initiale épaisse. Il suffit d'utiliser un schéma standard d'approximation des EDO (voir [1, 2]) et de l'utiliser successivement sur les intervalles $[n\tau, (n + 1)\tau]$.

D'un point de vue pratique, il est plus commode d'utiliser un pas de discrétisation de la forme τ/N , le terme de retard se traduisant par une translation d'indice au niveau du schéma.

La figure 2 présente la solution obtenue de la sorte (on a utilisé la classique méthode de Runge-Kutta d'ordre 4) à partir d'une condition initiale satisfaisant $\phi(t) \equiv A_0 = 1$ et les valeurs suivantes

$$k = 2, \quad \alpha = 1, \quad \lambda = 1, \quad \tau = 2, \quad h = \tau/N = 10^{-1}.$$

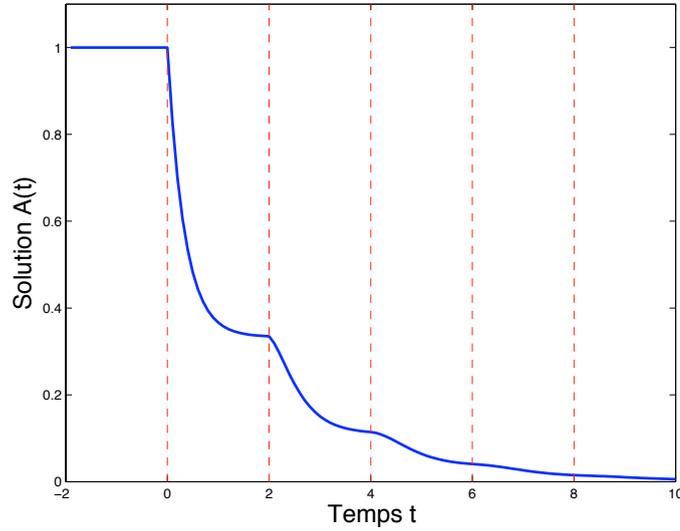


FIGURE 2 – Solution de l'EDR (3) pour $k = 2, \alpha = 1, \lambda = 1, \tau = 2, h = \tau/N = 10^{-1}$.

4 Un modèle plus réaliste

L'équation (3) est un modèle simplifié qui ne prend pas en compte les variations de température. Dans le cas d'une réaction exothermique, il y a dégagement de chaleur ce qui accélère la transformation, cf. la loi d'Arrhénius. Une version non-linéaire, plus proche de la réalité, s'écrit alors

$$\begin{cases} A'(t) = -K_0 e^{-Q/T(t)} A(t) + \alpha \left[(1 - \lambda) A_0 + \lambda A(t - \tau) - A(t) \right], \\ T'(t) = \kappa e^{-Q/T(t)} A(t) + \mu \lambda [T(t - \tau) - T(t)] + \mu (1 - \lambda) T_e, \end{cases} \quad (10)$$

où les paramètres K_0, Q, κ, μ, T_e sont tous positifs. On peut alors calculer le *rendement* selon l'expression

$$r = \frac{A_0 + (1 - \lambda)t_\infty A_0 - A(t_\infty)}{A_0 + (1 - \lambda)t_\infty A_0}. \quad (11)$$

La figure 3 montre l'évolution du rendement en fonction du taux de recirculation λ (pour $t_\infty = 4, \tau = 1, h = 0.05, k = 2, \alpha = 1, A_0 = 1, \kappa = 0.1, K_0 = 3, Q = 0.1, \mu = 0.01, T_e = 10$). Il est clair que la recirculation apporte un gain appréciable.

Il serait aussi utile d'étudier les variations du rendement en fonction de la durée de la réaction t_∞ et du retard τ .

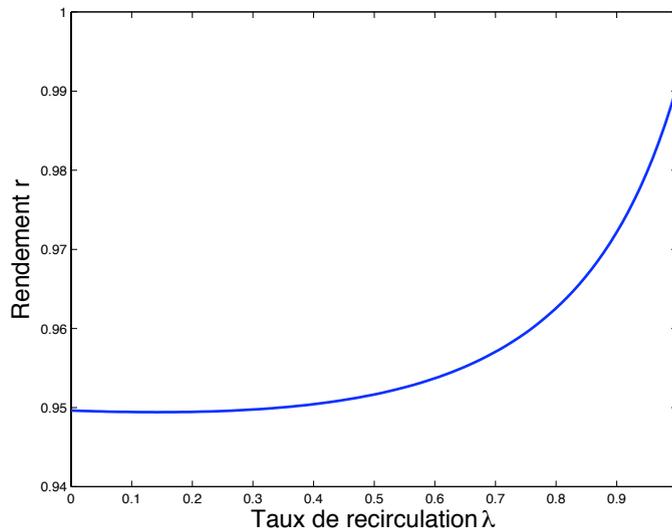


FIGURE 3 – Rendement en fonction du taux de recirculation.

Références

- [1] M. CROUZEIX, A. L. MIGNOT. *Analyse numérique des équations différentielles*. Collection mathématiques appliquées pour la maîtrise. Masson, Paris 1984.
- [2] J.-P. DEMAILLY. *Analyse numérique et équations différentielles*. PUG, Grenoble 1996.
- [3] S.-I. NICULESCU. *Stabilité des systèmes à retard*. Diderot Arts et Sciences 1999.

Suggestions. (le candidat est libre de ne pas les suivre)

1. On pourra détailler la modélisation du problème, en particulier l'origine terme de retard.
2. On éclaircira en termes de modélisation le choix de la fonction ϕ définissant la condition initiale sur $[-\tau, 0]$ pour le problème (3).
3. On pourra s'intéresser à la régularité de la solution de l'EDR (3) en s'appuyant, par exemple, sur l'exemple de la figure 2.
4. On pourra justifier le modèle (10) ainsi que la formule (11).