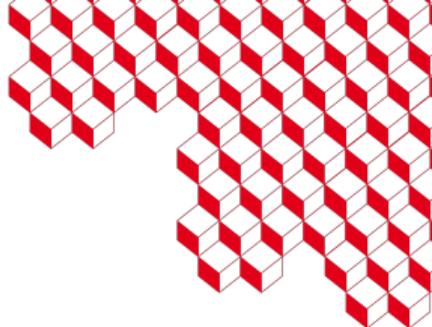




isas



Condition suffisante de convergence pour l'algorithme de Newton pour un système de transport réactif

SMAI 2025

Antonin Couvez

CEA DES/ISAS/DM2S/STMF SACLAY

Directeur : Pascal Omnes

Encadrant : Nikos Leterrier

Co-encadrant : Alexiane Plessier

Sommaire

Système chimique et équations du transport réactif

Système discret

Condition de convergence de la méthode de Newton

Applications

Conclusion



Système chimique

Un système chimique en milieu poreux saturé est défini par :

- l'ensemble des **espèces en phase liquide** noté $\mathcal{C} = (\mathcal{C}_i)_{i \leq N_L}$,
- l'ensemble des **espèces en phase solide** noté $\mathcal{R} = (\mathcal{R}_k)_{k \leq N_S}$,
- l'ensemble des **réactions chimiques** noté $\mathcal{X} = (\mathcal{X}_j)_{j \leq N_V}$.

La réaction \mathcal{X}_j est associée une équation formelle écrit sous la forme :

$$\sum_{i \leq N_L} \alpha_{j,i} \mathcal{C}_i + \sum_{k \leq N_S} \beta_{j,k} \mathcal{R}_k = 0. \quad (1)$$

Les constantes $\alpha_{j,i}$ et $\beta_{j,k}$ sont les **coefficients stœchiométriques** de la réaction.

Phase liquide

La loi de conservation de la matière pour une espèce liquide est :

$$\partial_t(\phi c_i) + \mathcal{L}_i(\phi)c_i - f_i(t, x, c, r) = 0, \quad (2)$$

- c_i est la concentration de l'espèce C_i ,
- ϕ est la porosité,
- \mathcal{L} est l'opérateur de transport pour une diffusion d_i et une vitesse de liquide \vec{U} :

$$\mathcal{L}_i(\phi)c_i = \nabla \cdot (\phi c_i \vec{U} - d_i \nabla \phi c_i). \quad (3)$$

- f_i est le terme de production-destruction chimique :

$$f_i(t, x, c, r) = \sum_j \alpha_{j,i} \kappa_j(t, x, c, r). \quad (4)$$

- κ_j est le taux de réaction associé à la réaction \mathcal{X}_j .

Phase solide

La loi de conservation de la matière pour une espèce solide est :

$$\partial_t((1 - \phi)r_k) - h_k(t, x, c, r) = 0. \quad (5)$$

- r_k est la concentration de l'espèce \mathcal{R}_k
- h_k est le terme de production-destruction chimique :

$$h_k(t, x, c, r) = \sum_j \beta_{j,k} \kappa_j(t, x, c, r). \quad (6)$$

La loi de densité de phase est :

$$\phi + \sum_{k \leq N_S} v_k r_k - 1 = 0. \quad (7)$$

- v_k est le volume molaire de \mathcal{R}_k

Exemple : Réaction d'ordre 1

On pose un système avec deux espèces chimiques A et B . L'espèce A est en phase liquide et l'espèce B en phase solide. Il y a une unique réaction donnée par :



Le taux de réaction est $\kappa(c_A, c_B) = \lambda c_A$. Le système complet est alors :

$$\begin{cases} \partial(\phi c_A) + \nabla \cdot (\phi c_A \vec{U} - d_i \nabla \phi c_A) + \lambda c_A = 0, \\ \partial((1 - \phi) c_B) - \lambda c_A = 0, \\ 1 - \phi - v_B c_B = 0. \end{cases} \quad (9)$$

Sommaire

Système chimique et équations du transport réactif

Système discret

Condition de convergence de la méthode de Newton

Applications

Conclusion



Discrétisation spatiale

Après discrétisation en espace, on obtient :

$$\begin{cases} \partial_t(\phi^s c_i^s) + (\mathcal{L}_{h,i}(\phi) c_i)^s + f_i^s(t, c^s, r^s) = 0, \\ \partial_t[(1 - \phi^s) r_k^s] + h_k^s(t, c^s, r^s) = 0, \\ \phi^s + \sum_k v_k r_k^s - 1 = 0. \end{cases} \quad (10)$$

avec s l'indice de la cellule et \mathcal{L}_h l'opérateur de transport discret. La discrétisation spatiale est décrite par :

- **Maillage cartésien,**
- Discrétisation **volumes finis,**
- **Convection décentrée amont,**
- **Diffusion centré** avec flux à 2 points.

Discretisation temporelle

La dérivée temporelle est approximée par :

$$\partial_t Y(t^{n+1}) \approx \frac{1}{\tau^n} (Y^{n+1} + Q^n). \quad (11)$$

Le système totalement discrétisé sous forme vectorielle est :

$$\begin{cases} \mathbf{Diag}_{N_L}(\phi^{n+1})\mathbf{C}^{n+1} + \mathbf{Q}^n + \tau^n \left[\mathcal{L}^{n+1}(\phi^n)\mathbf{C}^{n+1} + F^{n+1}(\mathbf{C}^{n+1}, \mathbf{R}^{n+1}) \right] = 0, \\ \mathbf{Diag}_{N_S}(1 - \phi^{n+1})\mathbf{R}^{n+1} + \mathbf{Q}'^n + \tau^n \left[H^{n+1}(\mathbf{C}^{n+1}, \mathbf{R}^{n+1}) \right] = 0, \\ \phi^{n+1} - L(\mathbf{R}^{n+1}) = 0. \end{cases} \quad (12)$$

où \mathbf{Diag}_{N_L} est l'application qui à un vecteur de taille M associe la matrice diagonale de taille MN_L . La solution du système est la **racine** d'une fonction notée G_{n+1} .

Sommaire

Système chimique et équations du transport réactif

Système discret

Condition de convergence de la méthode de Newton

Applications

Conclusion





Théorème de Newton-Kantorovitch

Pour trouver $\mathbf{y} = (\mathbf{C}^n, \mathbf{R}^n, \phi^n)$ solution de $G_{n+1}(\mathbf{y}) = 0$, on calcule la suite définie par l'algorithme de Newton :

$$\mathbf{y}_{m+1} = \mathbf{y}_m - DG_{n+1}(\mathbf{y}_m)^{-1} G_{n+1}(\mathbf{y}_m), \quad (13)$$

Théorème de Newton-Kantorovitch (NK)

Soit O un ouvert de \mathbb{R}^n . Notons ρ_O une constante de Lipschitz pour la différentielle de G sur l'ouvert O . Soit \mathbf{y}_0 tel que $DG(\mathbf{y}_0)$ soit inversible. Notons $\nu = \|DG(\mathbf{y}_0)^{-1} G(\mathbf{y}_0)\|$. Sous les hypothèses

$$\rho_O \|DG(\mathbf{y}_0)^{-1}\| \nu < \frac{1}{2}, \quad (14)$$

et

$$B(\mathbf{y}_0, 2\nu) \subset O, \quad (15)$$

alors la suite de Newton $(\mathbf{y}_m)_m$ converge vers l'unique solution dans $B(\mathbf{y}_0, 2\nu)$.

Recherche d'une condition de convergence

Pour appliquer le théorème NK au système discret de transport réactif, il faut étudier des **propriétés ponctuelles** :

- vérifier que DG_{n+1} est inversible en \mathbf{y}_0 , (lemme 1)
- majorer $\|DG_{n+1}(\mathbf{y}_0)^{-1}\|_\infty$, (lemme 1)
- évaluer $\|G_{n+1}(\mathbf{y}_0)\|_\infty$.

Il faut ensuite vérifier des **propriétés locales** :

- estimer ρ_O (lemme 2)
- vérifier que $B(\mathbf{y}_0, 2\nu) \subset O$

Pour simplifier, on calculera ρ_O sur un ouvert $B(\mathbf{y}, \theta)$, et on le notera $\rho(\mathbf{y}, \theta)$. Ces estimations nous permettront de déduire une proposition sur la convergence de la méthode de Newton pour la recherche d'une solution de notre système.

Jacobienne

La jacobienne est donnée par :

$$DG_{n+1}(\mathbf{C}, \mathbf{R}, \phi) = Q(\mathbf{C}, \mathbf{R}, \phi) + \tau^n M(\mathbf{C}, \mathbf{R}), \quad (16)$$

où :

$$Q(\mathbf{C}, \mathbf{R}, \phi) = \begin{pmatrix} \mathbf{Diag}(\phi) + \tau^n \mathcal{L}(\phi^n) & 0 & \partial_\phi(\mathbf{Diag}(\phi)\mathbf{C}) \\ 0 & \mathbf{Diag}(1 - \phi) & \partial_\phi(\mathbf{Diag}(1 - \phi)\mathbf{R}) \\ 0 & -\partial_R L(\mathbf{R}) & I_M \end{pmatrix},$$

et

$$M(\mathbf{C}, \mathbf{R}) = \begin{pmatrix} \partial_C F(\mathbf{C}, \mathbf{R}) & \partial_R F(\mathbf{C}, \mathbf{R}) & 0 \\ \partial_C H(\mathbf{C}, \mathbf{R}) & \partial_R H(\mathbf{C}, \mathbf{R}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Inversibilité de la jacobienne

Lemme 1

On suppose que $\text{div}(\vec{U}) = 0$. Soit $\mathbf{y} = (\mathbf{C}, \mathbf{R}, \phi)$ tel que $0 \leq \mathbf{C}$, $0 \leq \mathbf{R}$ et $0 < \phi < 1$.
Notons :

$$\psi(\mathbf{y}) = \frac{1}{\bar{\phi}} \left(1 + \frac{\sum_{k \leq N_S} v_k}{\bar{\phi}} \right) (1 + \|\mathbf{y}\|_\infty),$$

où $\bar{\phi} = \min_s(1 - \phi^s, \phi^s)$. Si l'inégalité suivante est vérifiée :

$$\tau^n \psi(\mathbf{y}) \|M(\mathbf{y})\|_\infty \leq 1.$$

alors la jacobienne $DG_{n+1}(\mathbf{y})$ est inversible et on a la majoration suivante :

$$\|DG_{n+1}(\mathbf{y})^{-1}\|_\infty \leq \frac{1}{1 - \tau^n \psi(\mathbf{y}) \|M(\mathbf{y})\|_\infty} \psi(\mathbf{y}).$$

Norme lipschitzienne de la jacobienne

On note $\Gamma(\mathbf{y}_0, \theta)$ une constante de Lipschitz associée à la partie chimie sur l'ouvert $B(\mathbf{y}_0, \theta)$, i.e $\forall \mathbf{y}, \mathbf{y}' \in B(\mathbf{y}_0, \theta)$:

$$\|M(\mathbf{y}) - M(\mathbf{y}')\|_\infty \leq \Gamma(\mathbf{y}_0, \theta) \|\mathbf{y} - \mathbf{y}'\|_\infty$$

Lemme 2

Sur l'ouvert $B(\mathbf{y}_0, \theta)$, l'application qui à un triplet $(\mathbf{C}, \mathbf{R}, \phi)$ associe $DG_{n+1}(\mathbf{C}, \mathbf{R}, \phi)$ est lipschitzienne et une constante de Lipschitz $\rho(\mathbf{y}_0, \theta)$ acceptable pour cette application est :

$$\rho(\mathbf{y}_0, \theta) = 2 + \tau^n \Gamma(\mathbf{y}_0, \theta). \quad (17)$$

Condition de convergence

Proposition

Soit \mathbf{y}_0 un point initial pour la suite de Newton. On pose $\bar{\theta} = 3\psi(\mathbf{y}_0)\|G_{n+1}(\mathbf{y}_0)\|_\infty$.
Sous les conditions :

$$\tau^n \psi(\mathbf{y}_0)\|M(\mathbf{y}_0)\|_\infty < 1, \quad (18)$$

et

$$\|G_{n+1}(\mathbf{y}_0)\|_\infty \left(2 + \tau^n \Gamma(\mathbf{y}_0, \bar{\theta})\right) \left(\frac{\psi(\mathbf{y}_0)}{1 - \tau^n \psi(\mathbf{y}_0)\|M(\mathbf{y}_0)\|_\infty}\right)^2 < \frac{1}{2} \quad (19)$$

alors la fonction G_{n+1} admet une unique zéro, \mathbf{y}^{n+1} , dans $B(\mathbf{y}_0, \bar{\theta})$ et la suite de Newton converge vers \mathbf{y}^{n+1} .

Sommaire

Système chimique et équations du transport réactif

Système discret

Condition de convergence de la méthode de Newton

Applications

Conclusion



Méthode Adaptative Euler (ADE)

On estime que le solveur non-linéaire a **convergé numériquement** si une des **conditions** ci-dessous est vérifiée :

$$\frac{\|\mathbf{y}_{k+1} - \mathbf{y}_k\|_\infty}{\|\mathbf{y}_k\|_\infty} \leq \epsilon, \quad (20)$$

ou :

$$\|G_{n+1}(\mathbf{y}_{k+1})\|_\infty \leq \epsilon, \quad (21)$$

où ϵ est le **seuil de tolérance**. La **méthode adaptative AdE** consiste à sélectionner un nombre d'**itérations souhaité** p , si la convergence est vérifiée pour $k < p$, alors :

$$\tau^{n+1} = \mu^+ \tau^n,$$

avec $1 < \mu^+$. Dans le cas inverse, $p < k$, on a :

$$\tau^{n+1} = \mu^- \tau^n,$$

avec $\mu^- < 1$.

Cas test 1 : Autocatalyse

Cas d'une réaction d'autocatalyse avec 2 espèces chimiques :

$$\begin{cases} \partial_t c_A = -10^2 c_A c_B, \\ \partial_t c_B = +10^2 c_A c_B. \end{cases} \quad (22)$$

- Cas 0D,
- Pas de phase solide,
- La réaction est $A + 2B \mapsto 3B$,
- Le taux est $\kappa(c_A, c_B) = 10^2 c_A c_B$,
- $\|M(c_A, c_B)\|_\infty = 10^2 (c_A + c_B)$,
- $\Gamma(\mathbf{y}_0, \theta) = 2 \times 10^2$.

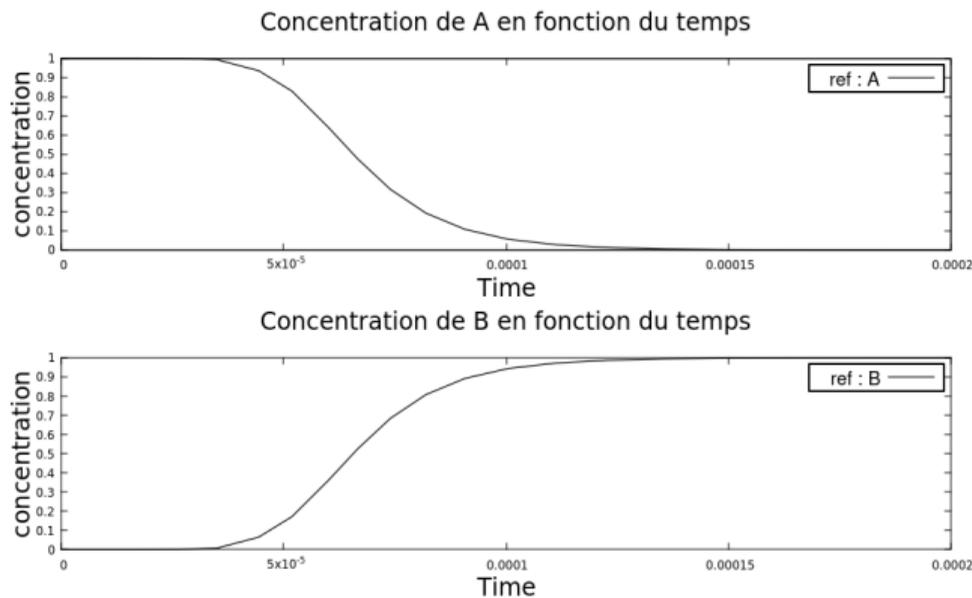


Figure 1 – Evolution des concentrations des espèces chimiques

Cas test 1 : Résultats

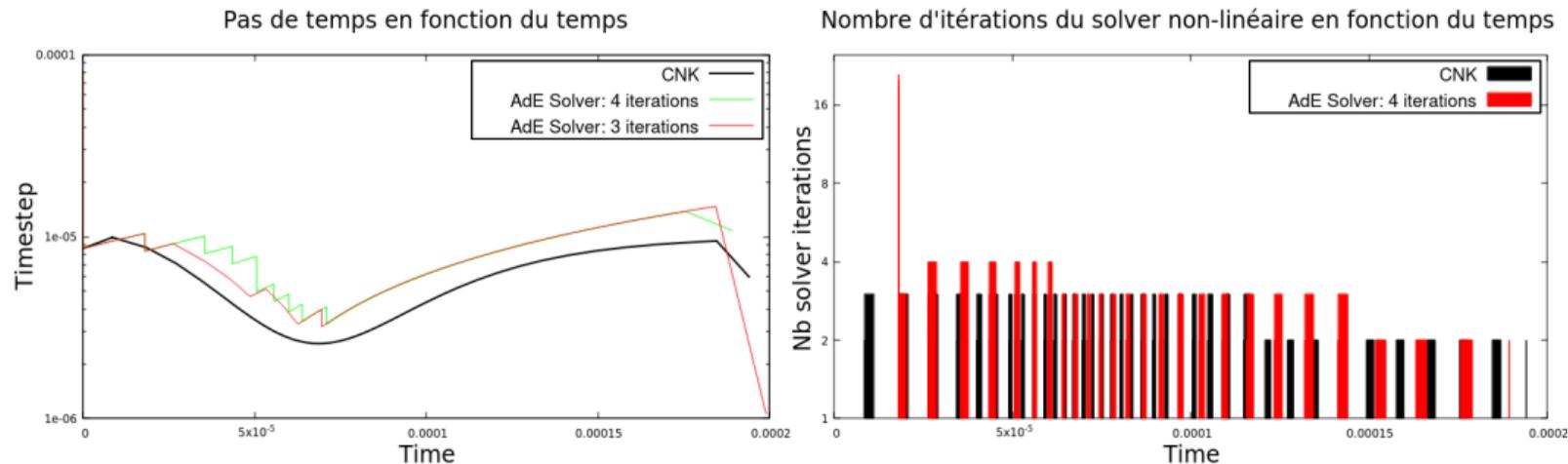


Figure 2 – Pas de temps et nombre d'itérations du solver en fonction du temps

Cas	CNK	AdE 4	AdE 3
temps CPU	5.5e-3	6.4e-3	7.3e-3
nombre de pas de temps	33	21	28
Nb itérations solver/pas de temps	2.6	5.2	4.5

Cas test 2 : Belousov-Zhabotinsky (BZ)

Cas de la réaction BZ avec 3 espèces chimiques :

$$\begin{cases} \partial_t c_X = k_1 c_Y - k_2 c_X c_Y + k_3 c_X - k_4 c_X^2, \\ \partial_t c_Y = -k_1 c_Y - k_2 c_X c_Y - k_5 c_Z, \\ \partial_t c_Z = k_3 c_X - k_5 c_Z. \end{cases} \quad (23)$$

- Cas 0D,
- Pas de phase solide,
- 5 réactions cinétiques,
- $\Gamma(\mathbf{y}_0, \theta) = 2k_2 + 2k_4$.

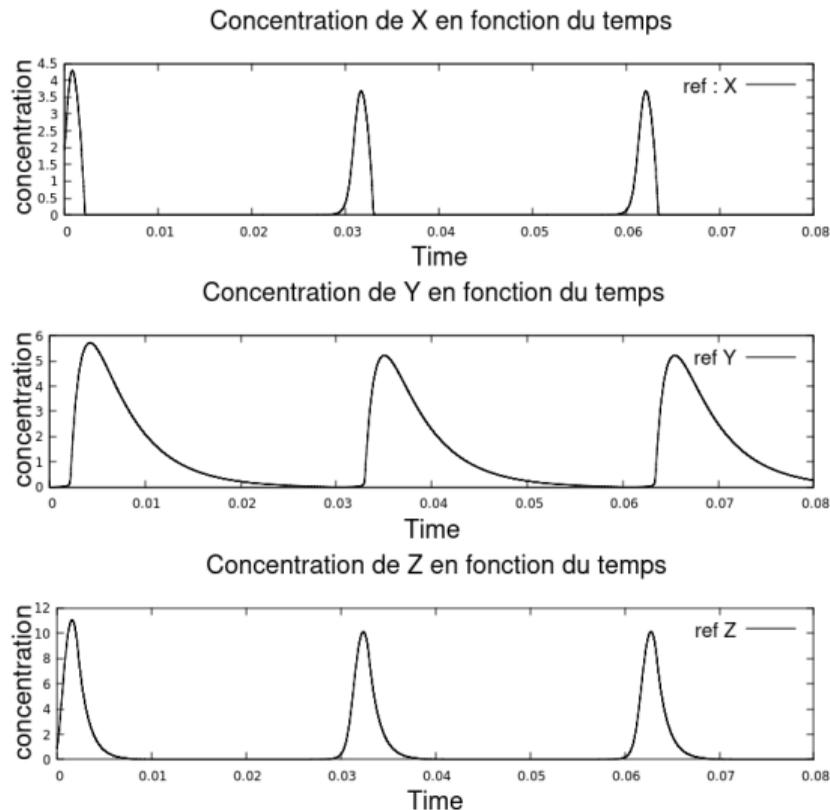


Figure 3 – Evolution des concentrations

Limite de la méthode AdE

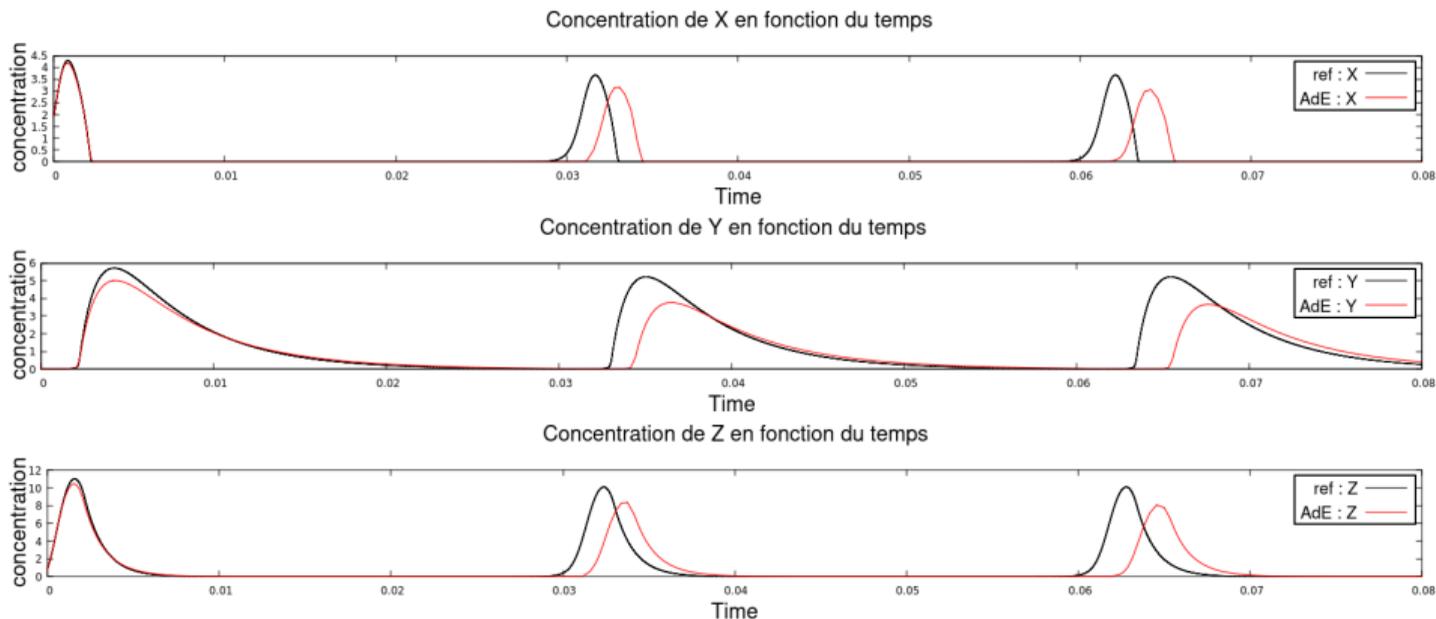


Figure 4 – Comparaison entre la solution de référence et la solution avec intégrateur AdE sans limitation

Cas test 2 : Résultats

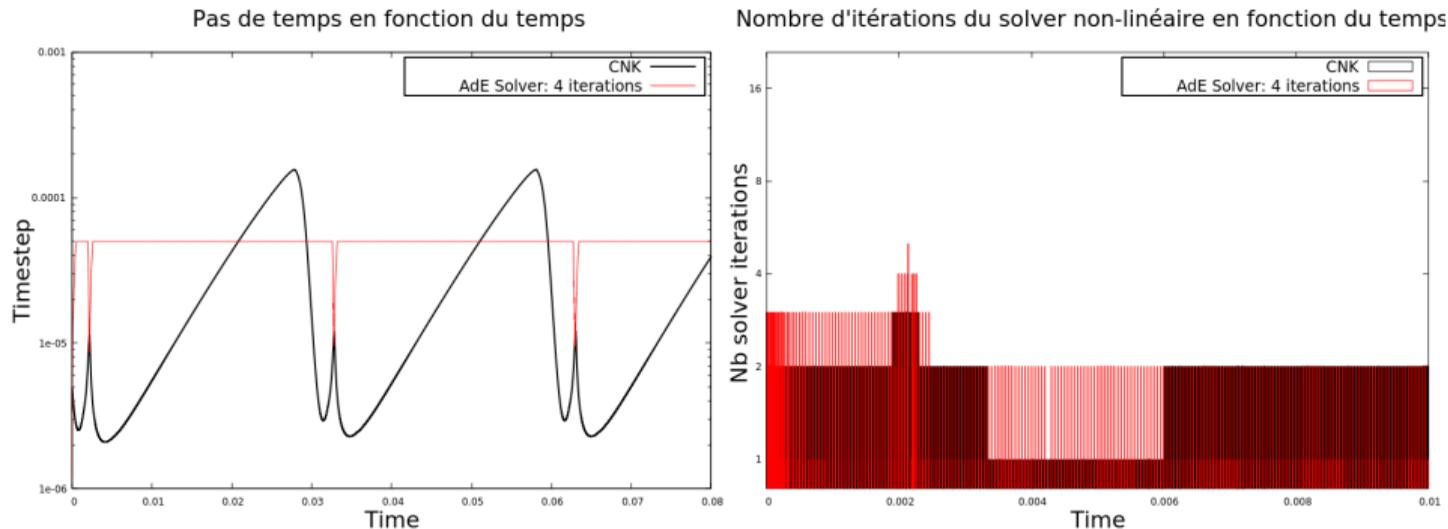


Figure 5 – Pas de temps en fonction du temps

Cas	CNK	AdE 4	AdE 3
temps CPU	1.47	0.72	0.74
nombre de pas de temps	14469	5022	5049
Nb itérations solver/pas de temps	1.75	2.32	2.34

Sommaire

Système chimique et équations du transport réactif

Système discret

Condition de convergence de la méthode de Newton

Applications

Conclusion



Conclusions et perspectives

Conclusions :

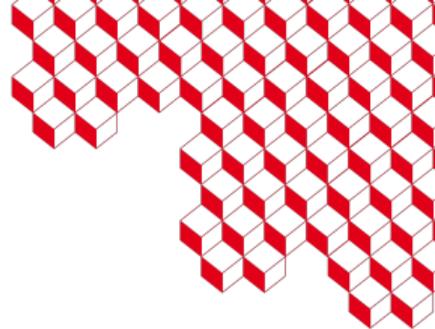
- On a montré qu'il était possible de déduire des conditions pour assurer la convergence de l'algorithme de Newton pour un système discret de transport réactif.
- L'application à des cas numériques montre l'utilité de ces conditions lorsque les solutions évoluent rapidement ou très peu.
- Lorsque les solutions évoluent faiblement, l'utilisation de la condition CNK diminue les performances.

Perspectives :

- L'étude numérique sur d'autres intégrateurs temporels.
- L'étude numérique sur des cas plus complexes.
- Une optimisation des performances avec une utilisation des conditions uniquement lorsque nécessaire.



isds



Merci pour votre attention

Bibliographie

- Nikos Leterrier, *Le module de résolution SCORPIO pour le transport réactif.*
- Nikos Leterrier, *ARES : An efficient approach to adaptive time integration for stiff Differential-Algebraic Equations.*
- Nicolas Bouillard, *Développement de méthodes numériques pour le transport réactif.*
- Jean-Pierre Dedieu, *Points Fixes, Zéros et la méthode de Newton.*
- Peter Deufhard, *Newton Methods for Nonlinear Problems*