

Titre: Modélisation d'écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié
Title: par la méthode de Boltzmann sur réseau

Auteur: Michel Ho
Author:

Date: 2022

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Ho, M. (2022). Modélisation d'écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié
Citation: par la méthode de Boltzmann sur réseau [Thèse de doctorat, Polytechnique
Montréal]. PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/10378/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/10378/>
PolyPublie URL:

**Directeurs de
recherche:** Jean-Yves Trépanier, Marcelo Reggio, & Sébastien Leclaire
Advisors:

Programme: Génie mécanique
Program:

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

**Modélisation d'écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié par la
méthode de Boltzmann sur réseau**

MICHEL HO

Département de génie mécanique

Thèse présentée en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*
Génie mécanique

Juin 2022

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

Cette thèse intitulée :

**Modélisation d'écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié par la
méthode de Boltzmann sur réseau**

présentée par **Michel HO**

en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*
a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

Jérôme VÉTEL, président

Jean-Yves TRÉPANIÉ, membre et directeur de recherche

Marcelo REGGIO, membre et codirecteur de recherche

Sébastien LECLAIRE, membre et codirecteur de recherche

David VIDAL, membre

Sébastien PONCET, membre externe

DÉDICACE

À ma famille,

REMERCIEMENTS

Mes premiers remerciements vont à mes professeurs qui m'ont encadré durant ces années de thèse, Jean-Yves, Marcelo et Sébastien. Merci de m'avoir supporté quelles que soient les décisions entreprises, de m'avoir soutenu durant les périodes où je doutais et me questionnais, c'est grâce à votre confiance que j'ai réussi à mener mon travail à son terme. Merci également au Pr. Alexandre Martin, qui m'a chaleureusement reçu à l'Université du Kentucky. Mon séjour aux États-Unis s'est vu raccourci mais m'a donné une motivation supplémentaire pour poursuivre mes recherches. Merci également aux autres professeurs qui m'ont fait confiance et offert des opportunités au sein de l'École, Pr. Sami Ammar et Pr. Bruno Blais. Enseigner à vos côtés était un plaisir et j'aurai été chanceux de vous avoir eu en tant qu'étudiant.

J'aimerais également remercier ma sœur Isabelle, pour son empathie et son accueil toujours bienveillant. Notre relation en tant que frère et sœur n'aura jamais été aussi proche et indispensable que lorsque je me suis exilé sur un continent différent.

Je remercie du plus profond de mon cœur les membres du club de ski de fond de l'Université de Montréal. Sans vous, je ne pense pas que j'aurai eu le mental de poursuivre mon doctorat, surtout pendant ces deux années de pandémie difficilement surmontables. Merci aux (très) anciens (Mateo, Léo, Paul, Paul 1, Caro, Andréa, Kristina, Solen, Stéphane, Will, Justine) et aux nouveaux (Élie, Marie, Sandrine, Léa, Viviane, Dorian, Alexia, David) d'avoir égayé les mardis et jeudis soirs (et plus!).

N'oublions pas les membres de la « secte » qui m'attendent bien sagement en France ! Promis, je reviendrai vous voir plus souvent !

Merci à toi Arthur, simplement par ta présence. Au moins, on se comprenait dans nos galères quotidiennes. C'est bien agréable d'avoir un ami comme toi.

Mes derniers remerciements vont à la MPP team, Bastien et Léa. Vous n'avez pas décidé de choisir le chemin le plus facile, mais je suis de tout cœur avec vous et j'espère être présent tout autant que vous l'avez été pour moi.

RÉSUMÉ

Plusieurs domaines d'application, allant des systèmes électromécaniques miniaturisés aux réservoirs de gaz de schiste, contribuent à l'intérêt grandissant dans la modélisation d'écoulements de fluide à l'échelle microscopique. Toutefois, à cette échelle d'observation, les effets discrets ne peuvent plus être négligés pour décrire l'écoulement. En particulier pour les gaz, on peut se trouver en régime d'écoulement raréfié. Les hypothèses de continuité et d'équilibre thermodynamique ne sont plus valides, et donc une modélisation cinétique de l'écoulement remplace la description du fluide par les équations de Navier-Stokes. En particulier dans ce régime d'écoulement, les mélanges gazeux peuvent perdre leur homogénéité malgré la simple phase gazeuse. La présente thèse porte sur le développement d'une méthode numérique capable de modéliser des mélanges gazeux miscibles en régime raréfié. Le développement sera basé sur la méthode de Boltzmann sur réseau, dont la théorie sous-jacente repose sur une description statistique de l'écoulement des gaz et est représentée par une forme discrète de l'équation de Boltzmann. Afin de modifier l'algorithme initialement utilisé pour simuler des écoulements dans le régime hydrodynamique, l'étude sera subdivisée en trois parties. La première partie compare deux modélisations de Boltzmann sur réseau, chacune étant reliée à une description des écoulements multicomposant miscibles en régime hydrodynamique. Les similarités et différences de chaque description sont mises en évidence pour des écoulements de convection-diffusion. Les conclusions découlant de l'étude comparative mènent au développement d'un modèle de Boltzmann sur réseau bidimensionnel pour des mélanges gazeux en régime raréfié dans la seconde partie. Différents cas tests sont proposés pour vérifier le modèle numérique. L'hétérogénéité de la phase gazeuse en régime raréfié, incarnée par la séparation de la phase gazeuse, est étudiée à travers les profils de vitesse et les débits volumiques spécifiques pour différents mélanges binaires. Le modèle numérique est finalement généralisé dans la troisième partie à des géométries tridimensionnelles. Le phénomène de diffusion moléculaire libre, ou diffusion de Knudsen, y est également considéré pour simuler des régimes d'écoulement fortement raréfiés. À des fins de validation, des calculs de débit massique dans de longs microcanaux sont comparés à des mesures expérimentales. L'influence de la composition du mélange, des caractéristiques géométriques et du régime d'écoulement sur la perméabilité apparente est finalement étudiée. La discussion découlant des résultats obtenus propose des pistes d'approfondissement pour une modélisation numérique plus fidèle des mélanges gazeux en régime raréfié.

ABSTRACT

Various applications in different fields, ranging from microelectromechanical systems to unconventional shale gas reservoirs, contribute to the growing interest in microscale flow modeling. However, discrete effects can no longer be neglected at this scale of study to accurately describe the flow behavior. The flow regime becomes rarefied, especially for the gaseous phase. As the continuum and thermodynamic equilibrium hypothesis break down, a kinetic modeling of the gaseous flow is required instead of the macroscopic Navier-Stokes equations. In this peculiar flow regime, gaseous mixtures may lose their homogeneity despite a miscible gaseous phase. The present thesis deals with the development of a numerical model based on the lattice Boltzmann method to simulate miscible gaseous mixtures in the rarefied regime. The lattice Boltzmann method solves a discrete form of the Boltzmann equation, which describes at the mesoscopic scale with help of the kinetic theory of gases. Initially designed to simulate flows in the hydrodynamic regime, several modifications to the algorithm of the numerical model are implemented to extend it to the rarefied regimes. The proposed study is divided in three main parts. The first part compares two lattice Boltzmann models for miscible multicomponent flows in the hydrodynamic regime. Since they treat multicomponent flows differently, the similarities and differences are highlighted through pressure-driven diffusive gas flows. The conclusions drawn from the comparative work led to the development of a two-dimensional lattice Boltzmann model for gaseous mixtures in the rarefied regimes in the second part. Different test cases are simulated for model verification. The heterogeneity of the gaseous phase, indicated by the gas phase separation phenomenon, is studied in terms of velocity profiles and species volumetric flow rates for various binary mixtures. Finally, the numerical model is generalized to three-dimensional geometries in the third part. The capabilities of the numerical model at highly rarefied regimes are also improved by including Knudsen diffusion. Mass flow rates are calculated and compared to experimental measurements in long microchannels for validation purposes. The influence of mixture composition, geometry and rarefaction rate on apparent permeability in microporous media is finally investigated. The discussion following the different numerical results points at potential avenues to explore with the aim of developing a more accurate and reliable numerical model for rarefied multicomponent gas flows.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE	iii
REMERCIEMENTS	iv
RÉSUMÉ	v
ABSTRACT	vi
TABLE DES MATIÈRES	vii
LISTE DES TABLEAUX	xi
LISTE DES FIGURES	xii
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	xvi
CHAPITRE 1 INTRODUCTION	1
1.1 Mise en contexte	1
1.2 Mécanismes de transport en régime raréfié	1
1.2.1 Théorie cinétique des gaz	1
1.2.2 Caractérisation de la raréfaction	2
1.2.3 Phénomène de glissement	4
1.2.4 Couche de Knudsen	6
1.2.5 Interactions additionnelles à l'interface gaz-solide	7
1.3 Écoulements raréfiés en milieux poreux	8
1.4 Extension aux mélanges gazeux	10
CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE	14
2.1 Modèle numérique standard de Boltzmann sur réseau	14
2.1.1 Cadre théorique	14
2.1.2 Équation de Boltzmann discrète	15
2.1.3 Opérateurs de collision	15
2.1.4 Algorithme de résolution	17
2.2 Adaptation au régime raréfié	19
2.2.1 Glissement aux parois solides	19
2.2.2 Couche de Knudsen	21

2.3	Traitement des mélanges gazeux en LBM	22
2.3.1	Traitement dynamique/passif	23
2.3.2	Traitement diffusif/convectif	24
2.3.3	Traitement simple fluide/multifluide	25
CHAPITRE 3 DÉMARCHE DE L'ENSEMBLE DU TRAVAIL DE RECHERCHE .		28
3.1	Hypothèses de modélisation	28
3.2	Thème 1 : Évaluer les performances numériques des modélisations de mélange gazeux en régime hydrodynamique avec la LBM	29
3.2.1	Motivations	29
3.2.2	Méthodologie	31
3.3	Thème 2 : Développer un modèle de Boltzmann sur réseau multicomposant pour des mélanges gazeux en régime raréfié selon l'approche multifluide.	32
3.3.1	Motivations	32
3.3.2	Méthodologie	32
3.4	Thème 3 : Développement d'un modèle de Boltzmann sur réseau tridimensionnel pour des mélanges gazeux en régime raréfié incluant la diffusion de Knudsen	35
3.4.1	Motivations	35
3.4.2	Méthodologie	37
CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : COMPARATIVE STUDY OF MULTICOMPONENT LATTICE BOLTZMANN MODELS FOR BINARY MIXTURE FLOWS.		39
4.1	Abstract	39
4.2	Introduction	39
4.3	Description of the LBM models	42
4.3.1	Single component LBM	42
4.3.2	The binary mixture model (BMM)	45
4.3.3	The individual species model (ISM)	48
4.4	Numerical results	50
4.4.1	Pure diffusion	50
4.4.2	Binary plane Poiseuille flow	53
4.4.3	Preliminary analysis	54
4.4.4	Mixture flow simulation in viscous diffusive competing regimes	56
4.5	Discussion	59
4.6	Conclusion	63

CHAPITRE 5	ARTICLE 2 : LATTICE BOLTZMANN MODELING OF MISCIBLE MULTICOMPONENT GAS MIXTURES IN THE RAREFIED REGIME	65
5.1	Abstract	65
5.2	Introduction	65
5.3	Multicomponent LBM model in the continuum regime	68
5.4	Adaptation to the rarefied regime	72
5.4.1	Mixture transport coefficients and rarefaction rate	72
5.4.2	Effective mean free path and wall function approach	75
5.4.3	Collision operator in the rarefied regime	76
5.4.4	Boundary conditions in the LBM for gaseous mixtures in the rarefied regime	77
5.5	Numerical results and discussion	79
5.5.1	Indifferentiability principle	80
5.5.2	Binary mixture under high pressure ratio	81
5.5.3	Species velocities in a rarefied binary mixture	84
5.5.4	Influence of mixture composition on rarefied gas mixture flows	87
5.6	Conclusion	93
CHAPITRE 6	ARTICLE 3 : LATTICE BOLTZMANN MODEL FOR RAREFIED GA- SEOUS MIXTURE FLOWS IN THREE-DIMENSIONAL POROUS MEDIA INCLU- DING KNUDSEN DIFFUSION	99
6.1	Abstract	99
6.2	Introduction	99
6.3	Description of the model	104
6.3.1	Individual species based LB model for gaseous mixtures	104
6.3.2	Transport coefficients and rarefaction rate	107
6.3.3	Effective viscosity calculation with a ray-tracing approach	109
6.3.4	Knudsen diffusion	110
6.3.5	Slip boundary conditions for arbitrary geometries	111
6.4	Numerical results	113
6.4.1	Model verification	113
6.4.2	Mixture mass flow rate calculation	116
6.4.3	Rarefied multicomponent flow in porous media	119
6.5	Conclusion	127
CHAPITRE 7	DISCUSSION GÉNÉRALE	130

CHAPITRE 8 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS	135
8.1 Synthèse des travaux	135
8.2 Améliorations futures	136
RÉFÉRENCES	138

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1	Régimes d'écoulement et nombres de Knudsen associés [1]	2
Tableau 1.2	Coefficients de glissement en vitesse selon le modèle de Maxwell. Les différentes valeurs sont arrangées selon leur méthode d'obtention : théorique (Th.), expérimentale (Exp.) ou numérique (Num.).	6
Table 4.1	Extreme values of δ^σ , δ^ζ and δ for $Sc = 0.005$. The values are given in lattice units.	62
Table 5.1	Molecular characteristics [2]. The molecular mass is given in Daltons (Da) and the molecular diameter is given in Angstrom (\AA).	81
Table 5.2	Reference value of Kn (Kn^{ref}) for the He-Ar mixture simulation in various works.	82
Table 6.1	Molecular characteristics of the gaseous mixtures from the hard-sphere model [2].	114
Table 6.2	Dimensions and domain discretizations for rectangular [3] and trapezoidal [4] cross-section microchannels.	116

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Pression et taille caractéristiques de quelques applications pratiques en régime raréfié. Les références liées aux données sont citées dans le texte.	5
Figure 1.2	Description cinétique du glissement aux parois selon la description de Maxwell [5].	7
Figure 1.3	Schéma explicatif de la couche de Knudsen. On suppose la vitesse à la paroi nulle ($\mathbf{u}_{\text{wall}} = \mathbf{0}$). Adapté de Zhang et al. [6].	8
Figure 2.1	Régimes d'écoulement dans lesquels s'inscrit le modèle LBM à développer (en gris). L'axe des abscisses indique le degré de raréfaction et l'axe des ordonnées représente le régime de convection-diffusion pour des écoulements multicomposant.	18
Figure 2.2	Comportements de réflexion d'une fonction de distribution selon un schéma de discrétisation D2Q9.	20
Figure 2.3	Lois de paroi entre deux plaques parallèles infinies en fonction de la distance normalisée $x^* = x/H$. La position $x^* = 0,5$ est à équidistance des deux plaques.	23
Figure 2.4	Coefficients de diffusion binaire, de Knudsen et effectifs en fonction du nombre de Knudsen pour un mélange équimolaire Air/CO ₂ . Le nombre de Knudsen est calculé à l'aide de l'équation (1.1) en prenant l'air comme gaz de référence.	25
Figure 4.1	D2Q9 discretization scheme	43
Figure 4.2	Temporal evolution of the second species density. Solid (-), dashed (-), dash-dotted (-·) and dotted (....) lines exhibit Eq. (4.43) for ζ at different time steps. Numerical results are displayed with markers (+) and (\square). Lines and markers at the same time step are identified by the same color. Density values are given in lattice units (l.u).	51
Figure 4.3	L ² -norm density relative error calculation as a function of the spatial step δx . Numerical results are displayed with markers (+) and (\square). The solid line (-) displays the expected behavior for a first order of convergence. Equation (4.43) gives the reference density profile for the relative error calculation.	52
Figure 4.4	L ² -norm density relative error calculation as a function of the molecular mass ratio \mathcal{R}_m . Equation (4.43) gives the reference density profile for the relative error calculation.	52

Figure 4.5	L^2 -norm velocity relative error calculation as a function of the spatial step δx at $Sc = 1$. The solid line (-) displays the expected behavior for a second order of convergence. Numerical results are displayed with markers. Equations (4.45), (4.47) and (4.48) are the respective reference velocities for the relative error calculation for (+), (\circ) and (\square).	56
Figure 4.6	Mixture and species velocities in a binary plane Poiseuille flow at $Sc = 10$, $\mathcal{R}_m = 10$ and $\mathcal{R}_\mu = 10$. The axial velocities are normalized by the maximum velocity of u_a^{BMM} at $y^* = 0$. Solid, dashed and dash-dotted lines account for the analytical solutions, whereas numerical results are displayed with markers (+), (\circ) and (\square).	58
Figure 4.7	L^2 -norm velocity relative error for the mixture flow with the BMM in the viscous dominant regime. Equation (4.45) gives the reference velocity for the relative error calculation.	58
Figure 4.8	Species velocities with the ISM at $Sc = 0.005$ at $x = L$. The axial velocities are normalized by the maximum velocity of u_a^{ISM} at $y^* = 0$. Solid, dashed and dotted lines account for the analytical solutions and numerical results are displayed with markers (\circ and \square).	60
Figure 4.9	Mixture velocity with the BMM at $Sc = 0.005$. The axial velocities are normalized by the maximum velocity of u_a^{BMM} at $y^* = 0$. Solid and dotted lines account for the analytical solutions and numerical results are displayed with markers (+).	61
Figure 4.10	Variation of $ \delta $ with \mathcal{R}_m , \mathcal{R}_μ and Sc . The contours of $ \delta $ are displayed in Fig. 4.10 for values greater than 0.05. The views are oriented from the triplets $[\mathcal{R}_m, \mathcal{R}_\mu, Sc] = [50, 10, 10^{-4}]$ (left) and $[\mathcal{R}_m, \mathcal{R}_\mu, Sc] = [1, 0.1, 10^{-4}]$ (right). The values of $ \delta $ are given in lattice units.	62
Figure 5.1	D2Q9 discretization stencil	70
Figure 5.2	Normalized axial velocity profile at the outlet (a) and velocity L^2 -norm relative error against spatial step δ_x (b) for a pure He microchannel flow at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.1$.	82
Figure 5.3	Molar fraction distribution of He (a) and normalized total pressure distribution (b) at the centerline for a He-Ar microchannel flow at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.59$. Dashed lines (- -) and markers (+) respectively identify rarefied binary mixture (r-BMM) [7] and McCormack [8] numerical results.	83

Figure 5.4	Molar fraction distribution of He (a) and normalized total pressure distribution (b) at the centerline for a He-Ar microchannel flow at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 4.41$. Dashed lines (- -) and markers (+) respectively identify rarefied binary mixture (r-BMM) [7] and McCormack [8] numerical results.	84
Figure 5.5	Normalized axial velocity profiles at the centerline in a microchannel flow for an equimolar Ne-Ar at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.12$ (a) and an equimolar He-Xe at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.21$ (b). Dashed lines and solid lines respectively identify the McCormack [9] numerical and the analytical [10] solutions.	86
Figure 5.6	Semi-log scale non-dimensional (a) and linear scale non-dimensional mixture (b) volumetric flow rates for an He-Ar microchannel flow at different molar fractions of He and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$	88
Figure 5.7	Rarefaction parameter z against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for different molar fractions of He for an He-Ar microchannel flow.	89
Figure 5.8	Non-dimensional species (a) and mixture (b) volumetric flow rates for different microchannel mixture flows at different $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$	90
Figure 5.9	Rarefaction parameter z against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for different microchannel mixture flows.	92
Figure 5.10	Rarefaction parameter z against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for different mixture flows in a short microchannel ($L/H = 1$). Open markers identify Direct Simulation Monte Carlo numerical results [11].	92
Figure 5.11	Mixture velocity slip coefficient C_1^{mix} against the molar fraction of He in He-Ar and He-H ₂ mixtures. Markers identify the linearized Boltzmann results [12]	97
Figure 5.12	Non-dimensional mixture volumetric flow rate $Q^{\text{mix}*}$ at different C_ψ for an He-Ar equimolar mixture against Kn^{ref} (a) and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ (b).	98
Figure 5.13	Kn^{mix} (5.36) and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ (5.23) against Kn^{ref}	98
Figure 6.1	D3Q19 discretization scheme	105
Figure 6.2	Scheme of the CBBSR boundary condition for arbitrary geometries. Dark gray color accounts for solid nodes, light gray color accounts for fluid boundary nodes, white color accounts for fluid nodes in the bulk domain.	113
Figure 6.3	Normalized axial velocity of He and Ar of an equimolar He-Ar mixture in a cylindrical microchannel at $\text{Kn}^{\text{mix}} = 0.1$. The analytical solution is extracted from Kerkhof <i>et al.</i> [10].	115

Figure 6.4	Velocity L^2 -norm relative error of He and Ar of an equimolar He-Ar mixture in a cylindrical microchannel at $\text{Kn}^{\text{mix}} = 0.1$	115
Figure 6.5	Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 15 kPa in a trapezoidal cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Szalmas <i>et al.</i> [4].	118
Figure 6.6	Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 8 kPa in a trapezoidal cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Szalmas <i>et al.</i> [4].	118
Figure 6.7	Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 15 kPa in a rectangular cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Pitakarnnop <i>et al.</i> [3].	119
Figure 6.8	Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 2 kPa in a rectangular cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Pitakarnnop <i>et al.</i> [3].	119
Figure 6.9	Microporous geometry	120
Figure 6.10	Normalized intrinsic permeability against porosity for different mesh sizes for the 3D staggered sphere geometry. The 3D correlation is taken from Jeong <i>et al.</i> [13].	121
Figure 6.11	Mixture permeability enhancement factor for the He-Ar mixture against Kn^{mix} at different porosities. The single component correlation is taken from Yang <i>et al.</i> [14].	122
Figure 6.12	Species permeability ratio for the He-Ar mixture against Kn^{mix} at different porosities.	123
Figure 6.13	Mixture permeability enhancement factor at $\epsilon = 0.7$ against Kn^{mix} for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.	125
Figure 6.14	Species permeability ratio at $\epsilon = 0.7$ against Kn^{mix} for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.	126
Figure 6.15	Mixture permeability enhancement factor f_c at $\epsilon = 0.7$ against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.	127
Figure 6.16	Species permeability ratio at $\epsilon = 0.7$ against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.	128

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

Abréviations

AAP	Andries-Aoki-Perthame
BGK	Bhatnager-Gross-Krook
BMM	<i>Binary mixture model</i>
CBBSR	<i>Combined bounce-back specular reflection</i>
CFD	<i>Computational fluid dynamics</i>
DBB	<i>Diffuse bounce-back</i>
DGM	<i>Dusty gas model</i>
DSMC	<i>Direct Simulation Monte Carlo</i>
DVM	<i>Discrete velocity method</i>
D2Q9	Schéma de discrétisation bidimensionnel à 9 vitesses discrètes
D2Q9-MRT	Opérateur de collision MRT basé sur le schéma de discrétisation D2Q9
D3Q19	Schéma de discrétisation tridimensionnel à 19 vitesses discrètes
D3Q19-MRT	Opérateur de collision MRT basé sur le schéma de discrétisation D3Q19
ISM	<i>Individual species model</i>
LB	<i>Lattice Boltzmann</i>
LBM	<i>Lattice Boltzmann Method</i>
MD	<i>Molecular Dynamics</i>
MEMS	<i>Microelectromechanical systems</i>
MRT	<i>Multi relaxation times</i>
r-BMM	<i>Rarefied binary mixture model</i>
r-ISM	<i>Rarefied individual species model</i>
S2I4	Schéma de calcul de gradient d'ordre 2 en espace et 4 en isotropie
TMAC	<i>Tangential momentum accommodation coefficient</i>

Symboles chimiques

Ar	Argon
CH ₄	Méthane
CO ₂	Dioxyde de carbone
He	Hélium
H ₂	Dihydrogène

H ₂ O	Eau
Kr	Krypton
N ₂	Diazote
Ne	Néon
O ₂	Dioxygène
Xe	Xénon

Nombres adimensionnels

Sc	Nombre de Schmidt
Sc ^{mix}	Nombre de Schmidt associé au mélange gazeux
Ma	Nombre de Mach
Re	Nombre de Reynolds
Kn	Nombre de Knudsen
Kn ^k	Nombre de Knudsen associé à l'espèce k
Kn ^{mix}	Nombre de Knudsen associé au mélange gazeux
Kn ^{ref} (Kn _{eff} ^{ref})	Nombre de Knudsen (effectif) associé à l'espèce de référence

Lettres latines

c	Vitesse de la lattice en LBM
c_s	Vitesse du son en LBM
c_s^k	Vitesse du son en LBM associée à l'espèce k
$C_{\text{slip},1}$	Coefficient d'ordre 1 du modèle de glissement de Maxwell
$C_{\text{slip},2}$	Coefficient d'ordre 2 du modèle de glissement de Maxwell
C_ψ	Coefficient empirique de loi de paroi sous la forme de Bosanquet
d	Diamètre moléculaire (m)
d^k	Diamètre moléculaire de l'espèce k (m)
d^{kl}	Moyenne arithmétique du diamètre moléculaire entre les espèces k et l (m)
D_{auto}	Coefficient d'auto-diffusion (m ² ·s ⁻¹)
D^{kl} (D_{eff}^{kl})	Coefficient de diffusion binaire $k - l$ (effectif) (m ² ·s ⁻¹)
D_K^k	Coefficient de diffusion de Knudsen de l'espèce k (m ² ·s ⁻¹)
\mathcal{E}_2	Erreur relative en norme euclidienne
$\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$	Vecteurs unitaires dans le repère de coordonnées cartésiennes
f	Fonction de distribution

f_i	Fonction de distribution discrète
f_i^*	Fonction de distribution discrète post-collision
\mathcal{F} ou \mathbf{F}	Vecteur force externe
\mathcal{F}^k ou \mathbf{F}^k	Vecteur force externe exercée sur l'espèce k
\mathbf{F}_B^k ou \mathcal{F}_B^k	Vecteur force externe exercée sur l'espèce k reliée à la pseudo vitesse du son en LBM
f_c	Fonction de correction de la perméabilité intrinsèque
\mathbf{F}_D^k ou \mathcal{F}_D^k	Vecteur force externe exercée sur l'espèce k reliée aux interactions interespèces
F_i	Contribution discrète de la force externe
$f_i^{(\text{eq})}$	Fonction de distribution discrète à l'équilibre
f_i^k	Fonction de distribution discrète associée à l'espèce k
H, L	Longueur caractéristique du domaine (m)
\mathcal{I}	Matrice identité
K_0	Perméabilité intrinsèque dans le sens de l'écoulement (m^2)
K_a	Perméabilité apparente (m^2)
k_B	Constante de Boltzmann ($\text{J}\cdot\text{K}^{-1}$)
\mathbf{K}_0	Matrice de perméabilité intrinsèque
m_i	Moment discret
m^k	Masse moléculaire de l'espèce k (kg)
m^{kl}	Moyenne harmonique des masses moléculaires entre les espèces k et l (kg)
m^{mix}	Masse moléculaire du mélange gazeux
m^{ref}	Masse moléculaire de l'espèce de référence (kg)
N	Nombre de composants dans le mélange gazeux
n	Densité numérique (m^{-3})
n^k	Densité numérique partielle de l'espèce k (m^{-3})
n_x, n_y, n_z	Nombre de nœuds selon l'axe $x, y,$ et z
\mathbf{n}	Vecteur normal à la paroi solide
\mathcal{M} ou \mathbf{M}	Matrice de passage de l'espace des fonctions de distribution à l'espace des moments
p	Pression caractéristique (Pa)
p_{in}, p_{out}	Pression d'entrée et de sortie (Pa)
p^k	Pression partielle de l'espèce k (Pa)
p^{mix}	Pression du mélange gazeux (Pa)
Q_0	Débit volumique du mélange gazeux en régime continu ($\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$)

Q^k (Q^{k*})	Débit volumique (adimensionnel) de l'espèce k ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)
Q^{mix} ($Q^{\text{mix}*}$)	Débit volumique (adimensionnel) du mélange gazeux ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)
r^k	Coefficient de condition limite CBBSR associé à l'espèce k
R	Constante des gaz parfaits ($\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)
\mathcal{R}_m	Ratio de masse
\mathcal{R}_μ	Ratio de viscosité dynamique
\mathcal{R}_p	Ratio de pression
\mathbf{S} ou \mathbf{S}	Matrice de relaxation pour l'opérateur de collision MRT
\mathbf{S}^k ou \mathbf{S}^k	Matrice de relaxation associée à l'espèce k pour l'opérateur de collision MRT
t	Temps (s)
T	Température (K)
\mathbf{t}	Vecteur tangentiel à la paroi solide
u^*	Vitesse adimensionnelle
u_a^{ISM} ($u_a^{\text{ISM},k}$)	Vitesse analytique du mélange gazeux (de l'espèce k) selon l'approche ISM
u_a^{BMM}	Vitesse analytique du mélange gazeux selon l'approche BMM
u_{slip} ou u_s	Vitesse de glissement du fluide
u_s^k	Vitesse de glissement de l'espèce k
u_t	Vitesse tangentielle à la paroi
u_{max}	Vitesse maximale
\mathbf{u}	Vecteur vitesse du fluide
\mathbf{u}^k	Vecteur vitesse de l'espèce k
\mathbf{u}^{mix}	Vecteur vitesse du mélange gazeux
\mathbf{u}_{wall}	Vecteur vitesse de la paroi solide
\bar{v}_{ave}	Vitesse moyenne thermodynamique du gaz ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)
\bar{v}_{ave}^k	Vitesse moyenne thermodynamique de l'espèce k ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)
x^*, y^*	Position adimensionnelle
\mathbf{x}	Vecteur position
z	Fréquence de collision intermoléculaire (s^{-1})
z^{kl}	Fréquence de collision intermoléculaire entre les espèces k et l (s^{-1})

Lettres grecques

α	Probabilité de réflexion diffusive
β^k	Coefficient de condition limite DBB associé à l'espèce k

γ	Indice adiabatique du gaz
δx	Pas d'espace (m)
δt	Pas de temps (s)
η	Viscosité dynamique (Pa·s)
η_0^k	Viscosité dynamique de l'espèce k en tant que composant pur (Pa·s)
η^k	Viscosité dynamique partielle de l'espèce k dans un mélange gazeux (Pa·s)
η^{mix}	Viscosité dynamique du mélange gazeux (Pa·s)
η_{eff}^k	Viscosité dynamique partielle effective de l'espèce k dans un mélange gazeux (Pa·s)
λ	Libre parcours moyen (m)
λ_0	Libre parcours moyen de référence (m)
λ_e ou λ_{eff}	Libre parcours moyen effectif (m)
λ^k (λ_{eff}^k)	Libre parcours moyen spécifique (effectif) de l'espèce k (m)
λ^{mix} ($\lambda_{\text{eff}}^{\text{mix}}$)	Libre parcours moyen (effectif) du mélange gazeux (m)
ν	Viscosité cinématique ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)
ν_e ou ν_{eff}	Viscosité cinématique effective ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)
ν^k (ν_{eff}^k)	Viscosité cinématique partielle (effective) de l'espèce k ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)
ν^{mix} ($\nu_{\text{eff}}^{\text{mix}}$)	Viscosité cinématique (effective) du mélange gazeux ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)
ξ	Vecteur vitesse moléculaire
ξ_i	Vecteur vitesse moléculaire discrète
ρ	Densité volumique ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)
ρ^k	Densité volumique partielle de l'espèce k ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)
ρ^{mix}	Densité volumique du mélange gazeux ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)
τ	Temps de relaxation
τ^k	Temps de relaxation associé à l'espèce k
τ_q	Temps de relaxation relatif au flux d'énergie
τ_D	Temps de relaxation relatif à la quantité de mouvement
τ_ν	Temps de relaxation relatif à la viscosité cinématique du fluide
ϕ	Porosité
χ^k	Fraction molaire de l'espèce k
ψ	Loi de paroi
Ω	Opérateur de collision
ω_i	Poids de discrétisation

Opérateurs

$\partial/\partial\mathbf{n} _{\text{wall}}$	Gradient normal à la paroi solide de normale \mathbf{n}
$\partial/\partial t$	Dérivée temporelle
∇	Gradient
∇_x	Gradient par rapport au vecteur position \mathbf{x}
∇_ξ	Gradient par rapport au vecteur vitesse moléculaire ξ
$\int d\xi$	Intégrale sur l'espace des vitesses moléculaires

Exceptions relatives aux articles

Article 1

λ	Variable relative aux solutions analytiques des approches simple fluide et multifluide
μ	Viscosité dynamique (Pa·s)
μ^k	Viscosité dynamique partielle de l'espèce k dans un mélange gazeux (Pa·s)
μ_0^k	Viscosité dynamique de l'espèce k en tant que composant pur (Pa·s)
S_i	Contribution discrète de la force externe
s^k	Ratio de masse moléculaire

Article 2

α^k	Coefficient d'accommodation de quantité de mouvement tangential associé à l'espèce k
$C_1^k (C_1^{\text{mix}})$	Coefficient d'ordre 1 selon le modèle de glissement de Maxwell pour l'espèce k (pour le mélange gazeux)
z	Paramètre de raréfaction

Article 3

C_o	Constriction
D	Diamètre de la sphère
d_p	Diamètre moyen de pore
$g(\theta, \phi)$	Fonction de distribution angulaire uniforme
K_0^*	Perméabilité intrinsèque adimensionnelle
$K^k (K^{\text{mix}})$	Perméabilité apparente de l'espèce k (du mélange gazeux)

$\text{Kn}_{\text{pure}}^k$	Nombre de Knudsen défini sur le libre parcours moyen de l'espèce k en tant que composant pur
R, θ, ϕ	Coordonnées sphériques
\mathcal{R}_K	Ratio des perméabilités apparentes spécifiques
\bar{u}^k (\bar{u}^{mix})	Vitesse moyenne de l'espèce k (du mélange gazeux) dans le sens de l'écoulement
ϵ	Porosité
η_e	Viscosité dynamique partielle (Pa·s)
λ_e^k	Libre parcours moyen effectif de l'espèce k (m)
τ_{or}	Tortuosité
$\psi(r)$	Fonction de distribution de libre parcours moyen en coordonnées sphériques
Ψ (Ψ^k)	Loi de paroi (associée à l'espèce k)
Ω^k	Opérateur de collision associé à l'espèce k

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Mise en contexte

Un des phénomènes physiques singuliers étudiés dans le cadre de cette thèse est mis en lumière par la modélisation de systèmes à échelle microscopique. L'intérêt pour une étude à cette échelle est grandissant notamment avec le développement de systèmes électromécaniques microscopiques (ou MEMS, pour *microelectromechanical systems* en anglais). Ce type d'équipements a des applications pratiques dans des domaines divers. Par exemple, des microanalyseurs et des micropompes sont utilisés dans le domaine biomédical pour purifier des mélanges gazeux ou administrer des médicaments [15–17]. La microfiltration par membrane et les microréacteurs sont également utilisés en chimie [18–20]. Les systèmes électroniques profitent aussi des MEMS et leur application au refroidissement de ceux-ci à petite échelle [21–24]. Aussi, l'étude d'écoulements de fluide à l'échelle microscopique permet également de capturer les phénomènes discrets ayant un impact à l'échelle macroscopique, comme dans les sols poreux riches en gaz de schiste [25, 26].

À cette échelle cependant, les équations macroscopiques de Navier-Stokes ne suffisent plus à décrire l'évolution du fluide. On dit alors que l'écoulement est **raréfié** et il est nécessaire de redéfinir les mécanismes de transport dans ce régime d'écoulement. Dans cette optique, on décrit par la suite les différents phénomènes physiques qui apparaissent en régime raréfié. L'influence de ces phénomènes sur les mélanges gazeux y est aussi détaillée, puisqu'ils représentent de manière plus réaliste les écoulements gazeux réels.

1.2 Mécanismes de transport en régime raréfié

Afin d'expliquer les différents mécanismes de transport en régime raréfié, on introduit tout d'abord la théorie cinétique des gaz, nécessaire pour décrire le comportement microscopique du fluide. On définit alors le degré de raréfaction et des différents effets associés à la raréfaction.

1.2.1 Théorie cinétique des gaz

Il est nécessaire de définir le cadre théorique dans lequel on résout les écoulements de fluide en régime raréfié avant de traiter des effets spécifiques à ces régimes. La théorie cinétique des gaz propose une description alternative aux équations macroscopiques, en modélisant

le fluide non pas comme un milieu continu, mais comme un ensemble de particules qui se déplacent et interagissent entre eux par des collisions élastiques [27]. Pendant le déplacement entre deux collisions successives, la particule n'est affectée par aucune force d'interaction de contact. En supposant un mouvement aléatoire des particules, il est possible de définir une valeur moyenne de ce déplacement appelée **libre parcours moyen** et que l'on peut relier aux grandeurs du système [28] :

$$\lambda = \frac{k_B T}{\sqrt{2} \pi d^2 p} \quad (1.1)$$

avec T et p respectivement la température et la pression du gaz, d le diamètre moléculaire du gaz et k_B la constante de Boltzmann.

L'étude individuelle de chaque particule de fluide ayant peu d'intérêt et étant beaucoup trop gourmande en ressources de calcul, même pour des écoulements raréfiés, on préférera passer par une approche statistique du gaz décrite par l'équation de Boltzmann [2]. À l'aide de dérivations mathématiques appropriées, il est alors possible de relier les interactions à l'échelle microscopique entre les particules qui suivent les lois de la dynamique et les phénomènes macroscopiques (viscosité, diffusion, transfert thermique, etc.).

1.2.2 Caractérisation de la raréfaction

Le degré de raréfaction d'un écoulement est caractérisé par le nombre adimensionnel de Knudsen (Kn), donné par la relation suivante :

$$\text{Kn} = \frac{\lambda}{H} \quad (1.2)$$

où H représente une longueur caractéristique du domaine.

En fonction du nombre de Knudsen, on peut classifier les différents régimes d'écoulement et les mécanismes de transport dominants ainsi qu'estimer leur impact sur le transport global du fluide. Le Tableau 1.1 identifie ainsi quatre régimes d'écoulement en fonction du nombre de Knudsen en reprenant la classification initiale de Schaaf et Chambre [1] :

Tableau 1.1 Régimes d'écoulement et nombres de Knudsen associés [1]

Régime d'écoulement	Valeurs de Kn
Hydrodynamique (continu)	$\text{Kn} \leq 0,001$
De glissement	$0,001 < \text{Kn} \leq 0,1$
De transition	$0,1 < \text{Kn} \leq 10$
Moléculaire libre	$\text{Kn} > 10$

- Pour un nombre de Kn inférieur à 0,001, le libre parcours moyen est très petit par rapport à la grandeur caractéristique du domaine. En d'autres termes, les particules de fluide étant très nombreuses, le gaz respecte non seulement l'hypothèse de continuité, mais est également en équilibre thermodynamique local de par ses nombreuses collisions intermoléculaires. Le gaz peut ainsi être décrit par les équations macroscopiques de Navier-Stokes [29].
- Pour un nombre de Kn variant entre 0,001 et 0,1, l'équilibre thermodynamique n'est plus respecté au voisinage des parois solides [6] : une vitesse de glissement aux parois apparaît. Toutefois, les collisions intermoléculaires restent suffisamment nombreuses dans les zones éloignées du mur de sorte que l'équilibre thermodynamique local est toujours assuré. Bien que les équations macroscopiques ne soient plus suffisantes pour décrire le fluide sur l'ensemble du domaine, elles peuvent malgré tout capturer le glissement aux parois solides en modifiant adéquatement les conditions aux limites [6].
- Pour Kn variant entre 0,1 et 10, non seulement le glissement aux parois est présent, mais la modélisation des interactions intermoléculaires nécessite une description cinétique du gaz. Il s'agit d'un régime d'écoulement où la relation entre le cisaillement et le taux de déformation n'est plus linéaire en raison du non-équilibre thermodynamique local et invalide la description du fluide par les équations de Navier-Stokes [6]. D'un point de vue macroscopique, les mécanismes de transport visqueux (lié aux collisions intermoléculaires), glissant (lié aux collisions avec les parois solides) et moléculaire libre (lié à la vitesse moléculaire de la particule) sont du même ordre de grandeur en régime de transition [30].
- Pour Kn supérieur à 10, on se trouve en régime moléculaire libre : les collisions intermoléculaires sont rares, voire inexistantes, et le comportement du fluide est principalement défini par les collisions avec les parois solides et la vitesse moléculaire calculée par la théorie cinétique des gaz. La viscosité du fluide, liée aux collisions intermoléculaires, n'est plus vraiment définie et une modélisation discrète du fluide est plus appropriée dans ce régime [6].

On peut ainsi voir la pertinence de la théorie cinétique des gaz pour les écoulements raréfiés, qui est applicable pour des gaz **dilués**, c'est-à-dire pour un gaz dont les particules sont suffisamment éloignées les unes des autres, ce qui est le cas pour des gaz raréfiés.

L'équation (1.2) montre que la raréfaction du fluide peut être causée par deux facteurs. Le premier est l'augmentation du libre parcours moyen en raison des écoulements à basse pression. Il a été initialement observé par Kundt et Warburg [31], puis par Knudsen [32]. Lorsque la pression diminue, la densité des particules est plus faible selon la loi des gaz

parfaits et éloigne les particules les unes par rapport aux autres. Une réduction de la taille caractéristique du domaine peut également entraîner la raréfaction de l'écoulement. À ces échelles, les collisions des particules de gaz avec les parois solides deviennent significatives par rapport aux collisions entre particules de gaz et ceci impacte l'écoulement dans sa globalité. Ce second facteur est responsable de l'apparition de la raréfaction dans les MEMS ou bien dans les réservoirs poreux riches en gaz de schiste. Le couplage des deux phénomènes existe notamment dans les applications aérospatiales où les gaz en haute atmosphère pénètrent les boucliers thermiques à géométrie microporeuse [33–36].

La Figure 1.1 situe quelques applications dans les différents régimes d'écoulement en fonction de la taille caractéristique et de la pression de fonctionnement. De nombreuses applications se retrouvent dans les régimes d'écoulement de glissement et de transition, nécessitant l'intégration des effets raréfiés dans la modélisation de l'écoulement.

1.2.3 Phénomène de glissement

À partir du régime de glissement, l'équilibre thermodynamique local n'est plus vérifié au voisinage des parois solides [6]. Ceci se traduit à l'échelle macroscopique par un non-équilibre de vitesse entre le fluide et la paroi solide.

Pour expliquer la présence du glissement, Maxwell modélise la paroi solide comme un assemblage de sphères sur lesquelles entrent en collision les particules de fluide. Un schéma modélisant le glissement vu par Maxwell est représenté à la Figure 1.2. Selon cette représentation de la paroi solide, la particule de fluide incidente peut observer deux comportements possibles de collision :

- La collision a lieu à la surface supérieure de la sphère, localement assimilable à une surface plane. Elle réfléchit alors de manière **spéculaire** avec une probabilité $0 \leq 1 - \alpha \leq 1$. Dans cette configuration, la particule rebondit avec la même composante tangentielle de vitesse.
- La collision a lieu avec une autre partie de la sphère. En fonction de la normale de collision, la particule peut réfléchir aléatoirement dans toutes les directions admissibles par le domaine. Elle réfléchit alors de manière **diffusive** avec une probabilité $0 \leq \alpha \leq 1$. Il y a alors équilibre thermodynamique avec la paroi solide, car sur l'ensemble des particules subissant une réflexion diffusive, la vitesse résultante est statistiquement celle de la paroi.

Dans le cas où un écoulement a une direction privilégiée, en raison d'un gradient de pression par exemple, la particule possède statistiquement une vitesse tangentielle au mur qui est non nulle, en sommant sur l'ensemble des réflexions spéculaires et diffusives. Après collision avec

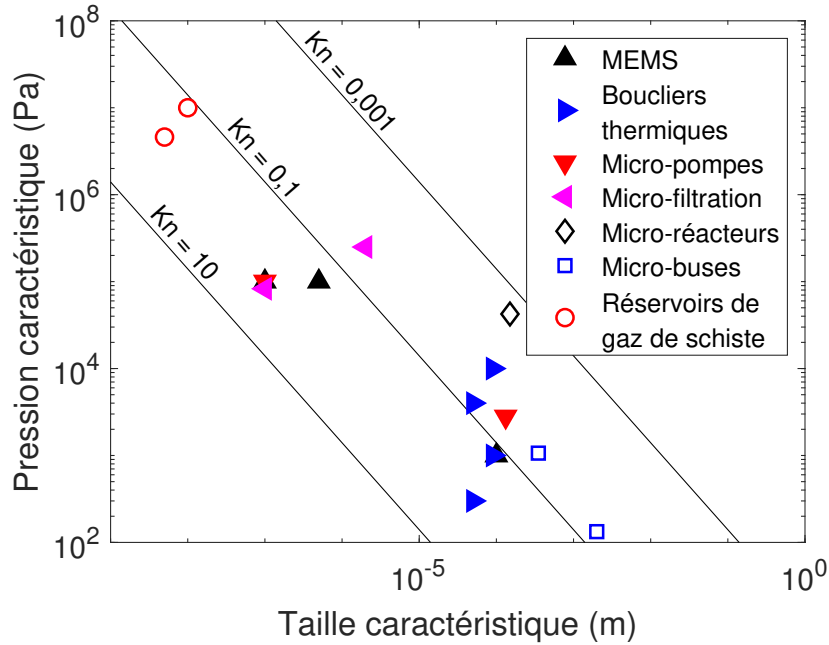


Figure 1.1 Pression et taille caractéristiques de quelques applications pratiques en régime raréfié. Les références liées aux données sont citées dans le texte.

la paroi solide, la particule se déplace en moyenne d'une distance λ avant d'entrer en collision avec une particule de fluide, qui associe donc une vitesse non nulle à cette collision. Ainsi, plus l'écoulement est raréfié et donc plus λ est grand, plus son impact sur l'écoulement du fluide global est important, expliquant donc la relation croissante entre λ et u_{slip} .

Une des expressions usuelles de ce glissement aux parois est donnée par le modèle de Maxwell [5], qui exprime la vitesse de glissement de fluide u_{slip} par :

$$u_{\text{slip}} - u_{\text{wall}} = \frac{2 - \alpha}{\alpha} \lambda \left. \frac{du_t}{dn} \right|_{\text{wall}} \quad (1.3)$$

où u_{wall} désigne la vitesse de la paroi solide et $du_t/dn|_{\text{wall}}$ est le gradient normal de la vitesse tangentielle à la paroi plane. Le coefficient α désigne le coefficient d'accommodation de quantité de mouvement tangentielle (ou TMAC, pour *Tangential momentum accommodation coefficient* en anglais) et se rapporte à la quantité de mouvement tangentielle transmise lors de la collision avec la paroi solide par rapport à la quantité de mouvement tangentielle incidente. Cette grandeur, généralement obtenue par mesure expérimentale, varie en fonction des conditions de l'écoulement (espèce gazeuse, température, pression) et de la surface solide utilisée (rugosité, matériau, forme) [27, 37, 38]. Le TMAC peut également être calculé théoriquement [39].

En régime de transition, le modèle de glissement d'ordre 1 de l'équation (1.3) est étendu à l'ordre 2 pour mieux capturer le glissement aux parois [40, 41] :

$$u_{\text{slip}} - u_{\text{wall}} = C_{\text{slip},1} \lambda \left. \frac{du_t}{dn} \right|_{\text{wall}} - C_{\text{slip},2} \lambda^2 \left. \frac{d^2u_t}{dn^2} \right|_{\text{wall}} \quad (1.4)$$

où $C_{\text{slip},1} = (2 - \alpha)/\alpha$ et $C_{\text{slip},2}$ est le coefficient de glissement d'ordre 2, également déterminé par mesure expérimentale ou par la théorie.

Le Tableau 1.2 liste de manière non exhaustive quelques valeurs de $C_{\text{slip},1}$ et $C_{\text{slip},2}$ obtenues ainsi que les conditions expérimentales dans lesquelles elles ont été mesurées, le cas échéant.

Tableau 1.2 Coefficients de glissement en vitesse selon le modèle de Maxwell. Les différentes valeurs sont arrangées selon leur méthode d'obtention : théorique (Th.), expérimentale (Exp.) ou numérique (Num.).

Réf.	Méthode	Gaz	Matériau	Plage de Kn	$C_{\text{slip},1}$	$C_{\text{slip},2}$
[5]	Th.	–	–	–	1	–
[39]	Th.	–	–	–	1	-9/8
[42]	Exp.	N ₂	Aluminium	0,1-1,7	1,15	0,14
[43]	Exp.	He	Verre	0,02-0,3	1,25	-
		Ne	Verre	0,02-0,9	1,33	–
[44]	Exp.	Ar, N ₂ , CO ₂	Silicone	0,3-0,44	1,15	0,98
[41]	Exp.	N ₂ , He	Silicone	0-0,44	1,15	–
		N ₂	Silicone	0,002-0,6	1,3±0,05	0,23±0,1
[45]	Exp.	He	Silicone	0,06-0,8	1,2±0,05	0,26±0,1
		He	Silicone	0,03-0,7	1,26±0,02	–
[46]	Exp.	N ₂ , O ₂ , Ar	Silicone, Quartz	0,07-1,13	1,16	0,145
[47]	Num.	Ar	Silicone	1,30	–	–
		Ar	Silicone oxydé	–	2,58	–
		N ₂	Silicone	–	1,45	–
		N ₂	Silicone oxydé	–	2,75	–
		CO ₂	Silicone	–	1,43	–
[48]	Num.	CO ₂	Silicone oxydé	–	1,31	–
		Ar	–	1,67	–	–

1.2.4 Couche de Knudsen

L'apparition d'une couche de Knudsen est la manifestation d'un état thermodynamique local hors équilibre. Cette couche apparaît aux abords des parois solides et possède une épaisseur de l'ordre d'un libre parcours moyen : elle s'épaissit donc avec la raréfaction du fluide [6]. À l'intérieur de cette couche de Knudsen, la relation linéaire entre le cisaillement et le taux

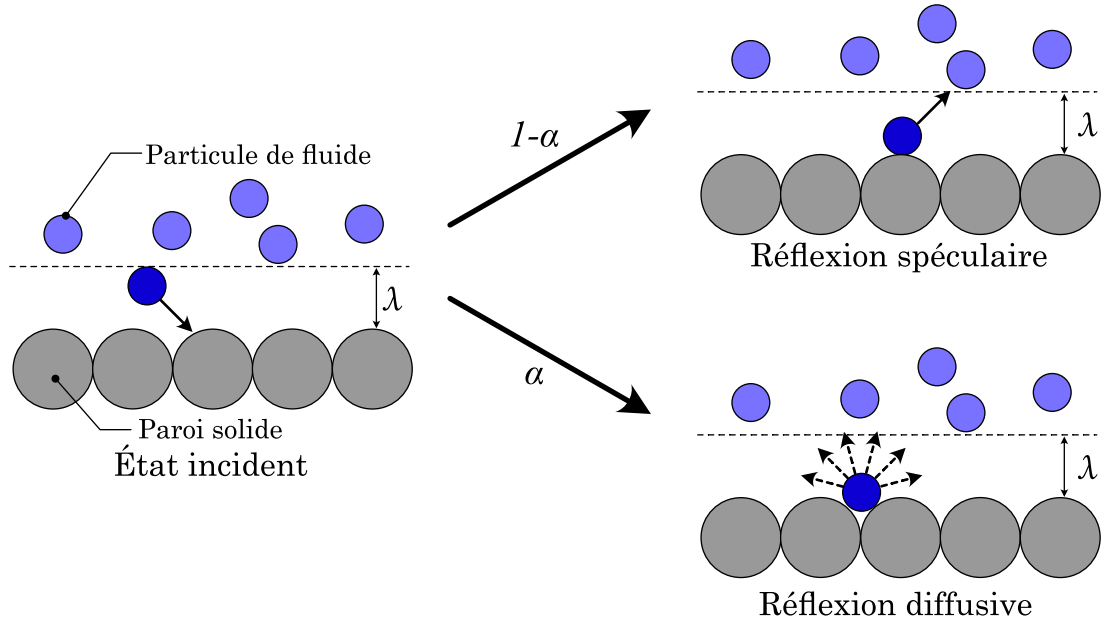


Figure 1.2 Description cinétique du glissement aux parois selon la description de Maxwell [5].

de déformation du fluide, définie dans les équations de Navier-Stokes, n'est plus valide. Le comportement non linéaire du fluide a un effet important à l'échelle macroscopique, étant responsable de l'augmentation du débit massique [49]. La Figure 1.3 montre qualitativement le profil de vitesse du fluide au voisinage de la paroi solide dans cette couche de Knudsen. À l'intérieur de la couche, on remarque que le profil de vitesse réel n'est plus représentable par les équations de Navier-Stokes, même avec des conditions aux limites de glissement : les profils limites calculés à l'aide des équations de Navier-Stokes avec la condition de glissement u_{slip} ou u_{slip}^* (représentés en pointillés sur la Figure 1.3) montrent que la vitesse sera sous-estimée ou surestimée à l'intérieur de la couche de Knudsen, selon la valeur de la vitesse de glissement imposée.

1.2.5 Interactions additionnelles à l'interface gaz-solide

La particularité de l'écoulement en régime raréfié est que tout effet discret ne peut plus être négligé, puisqu'il peut être responsable d'une proportion significative de l'écoulement global de l'écoulement. Parmi eux, on peut citer deux phénomènes physiques supplémentaires à considérer :

- Lorsque l'écoulement est thermique, le modèle de glissement de Maxwell possède un terme additionnel lié au gradient de température. Ce terme apparaît en raison de l'état thermodynamique hors équilibre amenant à un saut de température entre la paroi et

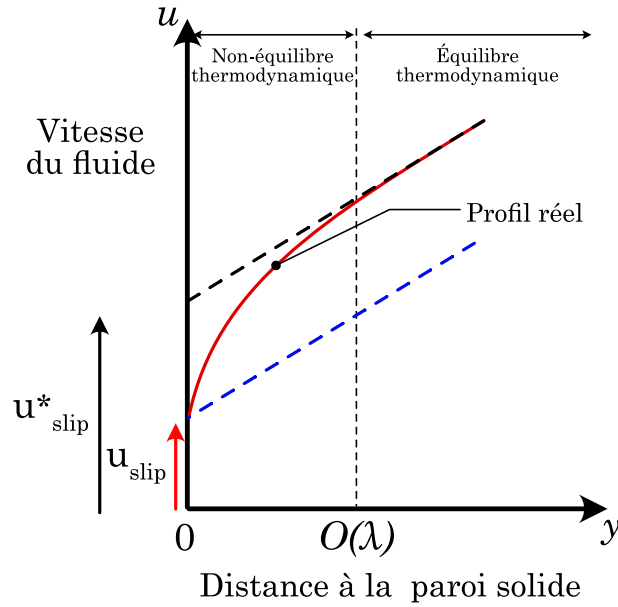


Figure 1.3 Schéma explicatif de la couche de Knudsen. On suppose la vitesse à la paroi nulle ($\mathbf{u}_{\text{wall}} = \mathbf{0}$). Adapté de Zhang et al. [6].

le fluide voisin, générant ainsi un gradient de température non nul et qui favorise d'autant plus le glissement [5, 50–52].

- La diffusion de surface est un phénomène causé par la polarité des molécules gazeuses. En raison de l'attraction des charges électroniques de signes opposés, les particules vont adhérer et diffuser en surface du solide par adsorption [53]. Ce phénomène apparaît notamment dans les réservoirs poreux de gaz de schiste [26, 54–57]. La diffusion de surface a un effet atténuant du glissement, puisque tout espace de la surface solide soumis à la diffusion de surface est indisponible pour la collision gaz-solide amenant à une vitesse de glissement.

1.3 Écoulements raréfiés en milieux poreux

L'étude des écoulements de fluide dans les milieux poreux est motivée par les applications pratiques qui tirent profit de leur géométrie spécifique. Leur grande surface spécifique par rapport au volume occupé bénéficie à diverses applications comme la filtration de particules [58], les écoulements réactifs en surface [59–61] ou bien pour l'industrie papetière [62]. Les effets raréfiés de l'écoulement apparaissent en présence de pores microscopiques [56, 57] et doivent être considérés pour modéliser la performance du milieu poreux à l'échelle macroscopique.

Un milieu poreux est constitué d'une partie solide et d'une partie vide permettant le passage

du fluide. On identifie un milieu poreux par sa porosité ϕ , qui est le ratio entre le volume de vide par rapport au volume total occupé par le milieu. D'autres caractéristiques géométriques permettent de définir plus précisément la structure poreuse, comme la constriction, la tortuosité, ou même la grandeur caractéristique de la géométrie élémentaire constitutive du milieu poreux (diamètre de la fibre, de la sphère, etc.).

Une grandeur d'intérêt dans l'étude des écoulements poreux est sa perméabilité, qui définit la résistance du milieu poreux au passage du fluide à travers celui-ci. En régime hydrodynamique et pour des écoulements à faible vitesse, la loi de Darcy est usuellement employée [13] pour déterminer la matrice de perméabilité \mathbf{K}_0 d'un milieu poreux :

$$\mathbf{u} = -\frac{\mathbf{K}_0}{\eta} \cdot \nabla p \quad (1.5)$$

où \mathbf{u} , η et ∇p sont respectivement le vecteur vitesse, la viscosité dynamique et le vecteur gradient de pression du fluide.

On travaille généralement sur l'équivalent scalaire de l'équation (1.5) où l'on étudie uniquement la perméabilité selon une direction de gradient de pression : $u = -\frac{K_0}{\eta} \cdot \nabla p$.

Des corrélations ont été développées entre la perméabilité et la porosité seule, qui est le paramètre majeur d'un milieu poreux, comme les relations d'Ergun [63] ou de Kozeny-Carman [64]. Cependant, le caractère aléatoire du milieu poreux rend compliqué l'application d'une loi générale, donc le calcul direct de la perméabilité par l'étude des débits reste privilégié [65].

En régime hydrodynamique, la perméabilité calculée par l'équation (1.5) est appelée **perméabilité intrinsèque**, car sa valeur restera identique quelles que soient les conditions d'écoulement vérifiant ce régime pour une géométrie donnée. Une des premières études sur la variation de la perméabilité en régime raréfié a été réalisée par Klinkenberg [66], où il a été observé que celle-ci augmente avec la diminution de la pression moyenne d'écoulement. On introduit alors la notion de **perméabilité apparente**, notée K_a , qui est une grandeur dynamique du système et dépend à la fois de la géométrie du milieu (à travers la perméabilité intrinsèque) et des caractéristiques de l'écoulement. On peut alors la définir comme :

$$K_a = K_0 \cdot f_c(Kn) \quad (1.6)$$

où f_c est une fonction de correction de la perméabilité intrinsèque en fonction du nombre de Knudsen.

Initialement, f_c s'exprimait inversement proportionnelle à la pression de l'écoulement (donc

linéairement proportionnelle au nombre de Knudsen) avec des paramètres empiriques à déterminer expérimentalement. Les nombreuses corrélations existantes dans la littérature pour la perméabilité apparente [14,67,68] indiquent que l'effet de raréfaction sur l'écoulement dans les géométries poreuses reste encore à explorer.

1.4 Extension aux mélanges gazeux

La description des phénomènes physiques en régime raréfié et au sein de milieux poreux est généralement présentée en considérant un fluide unique. Or, ceci n'est généralement pas représentatif des gaz réels : l'air, que l'on modélise généralement par un mélange de dioxygène et de diazote en est un exemple concret. L'incorporation d'un « degré de liberté » supplémentaire (à savoir le choix du mélange gazeux considéré) amène également des phénomènes de transport additionnels.

On définit par mélange gazeux un ensemble de deux ou plusieurs espèces chimiques à l'état gazeux et dans des proportions différentes. En raison de la phase considérée, le mélange est considéré comme miscible, c'est-à-dire qu'une seule phase est observable à l'échelle macroscopique. Une des particularités du mélange gazeux est qu'en l'absence de gradient de pression ou de force externe, il peut y avoir un transport d'espèces en raison d'un gradient de concentration : le mécanisme de transport est alors la diffusion des espèces.

La théorie menant à la diffusion multiespèces est dérivée de la théorie cinétique des gaz : en conséquence de l'agitation thermique qui associe une vitesse moléculaire à chaque composant du mélange, ceux-ci vont se déplacer des zones de plus forte concentration aux zones de plus faible concentration, afin d'uniformiser les inégalités de distribution des particules [27]. D'un point de vue macroscopique, le mélange gazeux restera globalement immobile, mais s'il était possible de distinguer les différentes espèces d'un mélange, il y aurait une vitesse associée à chaque espèce. Si l'on prend la représentation simple d'un mélange gazeux constitué de deux composants, les vitesses spécifiques seraient alors de sens opposées afin de conserver une quantité de mouvement globale nulle. Le mouvement des particules d'espèces différentes entrant en collision génère une force de friction inter-espèces [10]. À cette force de friction est associé un coefficient de diffusion dit « **binaire** », puisque les collisions ternaires (et plus) sont rares dans les gaz dilués et ne sont donc pas considérées selon la théorie cinétique des gaz [2]. L'évolution d'un mélange gazeux de N composants en l'absence de gradient de pression suit finalement la loi de Stefan-Maxwell [10] :

$$\nabla p^k = - \sum_{l=1}^N p \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l) \quad (1.7)$$

où p^k , χ^k et \mathbf{u}^k désignent respectivement la pression partielle, la fraction molaire et le vecteur vitesse du composant k . La quantité D^{kl} représente le coefficient de diffusion binaire du composant k dans l . En sommant sur l'ensemble des composants du mélange et en appliquant la symétrie sur le coefficient de diffusion binaire, c.-à-d., $D^{kl} = D^{lk}$, l'équation (1.7) décrit bien le phénomène de transport isobare de chaque composant.

En présence d'un gradient de pression ou d'une force externe, le transport diffusif est combiné au transport convectif. Ainsi, le déplacement résultant du mélange est défini par le gradient de pression de la force motrice externe, tandis que la vitesse de chaque espèce est soit accélérée ou ralentie en fonction de la direction de la diffusion. Si l'on prend le cas particulier d'un mélange gazeux homogène dans tout le système, donc sans gradient de concentration des espèces, alors le mélange se comporte comme un fluide simple composant. Il peut alors être défini par les équations de Navier-Stokes, dont les propriétés de transport sont définies par des lois de mélange [69].

La pondération du flux par quantité de mouvement par rapport au flux diffusif dans les écoulements multiespèces est définie par le nombre de Schmidt :

$$\text{Sc} = \frac{\eta}{\rho D^{kl}} \quad (1.8)$$

En régime hydrodynamique, le flux diffusif est généralement très faible par rapport au flux par quantité de mouvement : Kerkhof et al. [10] expliquent cela par la faible magnitude du cisaillement visqueux par rapport à la force de friction interespèces. Ainsi, les particules d'une espèce auront tendance à échanger plus fréquemment de la quantité de mouvement à travers des collisions interespèces plutôt qu'avec des particules de vitesses différentes. Le mélange est ainsi d'abord homogénéisé localement par diffusion binaire avant d'être soumis aux contraintes visqueuses. L'aspect multiespèces n'aurait alors que peu d'impact sur le comportement du mélange en régime continu, si ce n'est pour la viscosité du mélange.

Toutefois, le caractère homogène se perd en régime raréfié. De même que pour le fluide simple composant, la diminution des collisions entre particules de fluide ne garantit plus l'équilibre thermodynamique local, que ce soit entre particules d'une même espèce ou bien entre les espèces du mélange. La perte de l'équilibre thermodynamique entre les différentes espèces du mélange force les différentes particules à évoluer graduellement vers un comportement indépendant. D'un point de vue macroscopique, cela apparaît comme une séparation de la phase gazeuse [9, 70, 71], où chaque composant possède une vitesse spécifique différente et occasionne des variations de concentration dans le domaine lors de l'écoulement du mélange. Ce phénomène en régime raréfié est notamment exploité dans la purification [72, 73] ou bien

le prétraitement avant analyse [74, 75] d'échantillons microscopiques pour des applications médicales.

L'étude numérique des écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié nécessite donc de relever plusieurs défis inhérents à la physique étudiée, la principale limite des modèles standards de mécanique des fluides étant la capture des effets raréfiés. Parmi les méthodes alternatives pouvant simuler les écoulements de fluide à plus petite échelle, la méthode de Boltzmann sur réseau (ou LBM, pour *Lattice Boltzmann method* en anglais) apparaît comme une solution prometteuse à la simulation de mélanges gazeux en régime raréfié. Sa description du fluide à l'échelle mésoscopique lui permet de calculer les grandeurs macroscopiques tout en incluant les effets microscopiques, permettant ainsi de couvrir un large régime d'écoulement sur une échelle de taille et de temps pertinente, ce dont peuvent souffrir d'autres méthodes numériques comparables, comme la dynamique moléculaire (ou MD, pour *Molecular Dynamics* en anglais) [76]. De plus, l'algorithme de calcul de la LBM rend son implémentation adaptée aussi bien à des problèmes multiphysiques tels que la compétition entre transport diffusif et transport convectif, qu'au traitement de géométries complexes, caractéristiques des milieux poreux.

À ce stade du manuscrit, il semble pertinent de préciser que le travail de recherche doctorale portera sur le développement numérique d'une méthode de Boltzmann sur réseau capable de modéliser les écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié à travers des milieux poreux. La méthode de Boltzmann sur réseau étant initialement développée pour résoudre les équations de Navier-Stokes [77], des adaptations doivent être apportées à l'algorithme de base. Les divers développements et résultats numériques présentés par la suite doivent permettre d'aboutir à une meilleure compréhension globale des phénomènes physiques présents dans les différentes applications mentionnées ci-dessus à l'aide de la simulation numérique.

Le reste du manuscrit est organisé de la manière suivante. Une revue de littérature est proposée dans le chapitre 2 et porte principalement sur le développement de la méthode de Boltzmann sur réseau et des adaptations existantes spécifiques au régime raréfié et au traitement des mélanges gazeux. Des améliorations potentielles sont identifiées et les hypothèses de modélisation sous lesquelles elles sont implémentées sont présentées au chapitre 3.

Les résultats principaux sont structurés aux chapitres 4, 5 et 6 sous la forme de trois articles scientifiques publiés ou soumis :

- Le chapitre 4 propose une comparaison de deux descriptions macroscopiques de mélanges gazeux en régime hydrodynamique dans le cadre numérique de la LBM. Les similarités et différences entre les deux approches sont qualitativement déterminées en fonction du régime d'écoulement ;

- Le chapitre 5 adapte l'une des approches étudiées au chapitre précédent au régime raréfié. La séparation de la phase gazeuse est étudiée à partir des profils de vitesse spécifique et analysée en fonction du degré de raréfaction et du mélange gazeux considéré ;
- Le chapitre 6 généralise le modèle précédemment développé aux géométries tridimensionnelles. Le modèle numérique est ajusté pour simuler plus précisément dans le régime de transition et est validé avec des mesures expérimentales de débit massique. Il est finalement appliqué à une géométrie poreuse afin d'étudier l'influence des caractéristiques géométriques sur l'écoulement du mélange gazeux.

La présentation des différentes contributions est suivie d'une discussion dans le chapitre 7 axée sur le cadre dans lequel le modèle a été actuellement développé et pointe les limites des modélisations possibles. Le chapitre 8 conclut sur la recherche effectuée durant cette thèse et propose des pistes supplémentaires à explorer.

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

L'état global des connaissances actuelles en modélisation numérique par la méthode de Boltzmann sur réseau est présenté dans ce chapitre. Pour mieux situer et mesurer les améliorations à apporter dans l'optique de la modélisation d'écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié, la revue sera construite en trois parties. La première décrit le modèle standard LBM, initialement développé pour obtenir les équations hydrodynamiques classiques. La seconde partie recense les modifications du modèle original pour simuler les effets raréfiés. La dernière partie traite de la modélisation de l'aspect multicomposant en LBM et oriente les décisions de développement numérique afin d'atteindre notre objectif principal.

2.1 Modèle numérique standard de Boltzmann sur réseau

Cette section présente brièvement les étapes fondamentales de l'implémentation numérique de la méthode de Boltzmann sur réseau à partir de l'équation de Boltzmann. Le texte se réfère à d'autres chapitres subséquents pour éviter toute redondance. Pour une description élémentaire du développement de la méthode pour des cas standards, une explication détaillée de la méthode et des liens avec la théorie est disponible dans le livre de Guo et al. [77].

2.1.1 Cadre théorique

La résolution numérique d'écoulements de fluides par la LBM se fonde sur la description mésoscopique de l'équation de Boltzmann [77] :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \boldsymbol{\xi} \cdot \nabla_{\boldsymbol{x}} f + \boldsymbol{\mathcal{F}} \cdot \nabla_{\boldsymbol{\xi}} f = \Omega(f) \quad (2.1)$$

où $\nabla_{\boldsymbol{j}} f$ désigne le gradient de la quantité f par rapport au vecteur \boldsymbol{j} et $\boldsymbol{\mathcal{F}}$ représente une force externe appliquée au système.

L'équation décrit l'évolution d'un gaz dans un état légèrement perturbé autour de son équilibre thermodynamique vers cet équilibre thermodynamique. Elle décrit le fluide non pas selon les grandeurs macroscopiques, mais selon une fonction de distribution de particules de gaz f définie par sa position \boldsymbol{x} et son vecteur vitesse moléculaire $\boldsymbol{\xi}$ à un temps t donné. L'évolution des fonctions de distribution dans l'espace et le temps est déterminée par le terme de collision $\Omega(f)$, définissant le taux de variation de ces fonctions de distributions en raison des collisions entre particules de gaz. Bien que non linéaire et complexe à définir, son expression doit ga-

rantir les propriétés de conservation du système (masse, quantité de mouvement, énergie). L’expression des équations macroscopiques du fluide à partir de la description mésoscopique est retrouvée à partir de la méthode de Chapman-Enskog et permet d’associer les coefficients de transport aux paramètres définissant l’opérateur de collision. Le développement n’est pas détaillé ici ; une dérivation est proposée à la section 1.4.2 du livre de Guo et al. [77].

2.1.2 Équation de Boltzmann discrète

Afin de résoudre numériquement l’équation (2.1), on emploie une formulation discrète de celle-ci, permettant de recalculer les différentes fonctions de distribution à chaque nœud discret et à chaque itération temporelle. De plus, la discrétisation s’effectue également sur l’espace des vitesses pour limiter le nombre de directions de propagation permises par le domaine numérique. L’équation discrète de Boltzmann s’écrit alors [77] :

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} + \boldsymbol{\xi} \cdot \nabla_x f_i + \mathcal{F} \cdot \nabla_{\boldsymbol{\xi}} f_i = \Omega(f_i) \quad (2.2)$$

où f_i désigne la fonction de distribution discrète des particules de fluide, à laquelle on associe une vitesse moléculaire discrète $\boldsymbol{\xi}_i$.

La discrétisation en espace δx et en temps δt en LBM est généralement unitaire dans le domaine numérique, c.-à-d., $\delta x = \delta t = 1$. Les nœuds de discrétisation étant arrangés sur une grille cartésienne structurée, on les identifie parfois par **lattices**, d’où le nom de la méthode numérique. La discrétisation de l’espace des vitesses peut prendre plusieurs formes ; toutefois, elle doit respecter les lois de conservation ainsi que l’isotropie du domaine [78]. Le schéma de discrétisation employé en LBM est identifié par le sigle DnQm, où n représente la dimensionnalité du problème et m le nombre de vitesses discrètes utilisé. Dans l’ensemble des travaux effectués durant la thèse, les schémas de discrétisation D2Q9 et D3Q19 ont été employés respectivement pour les simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles, dont les détails sont respectivement donnés au chapitre 4 pour le schéma D2Q9 et au chapitre 6 pour le schéma D3Q19.

2.1.3 Opérateurs de collision

L’opérateur de collision $\Omega(f)$ à l’équation (2.1) est un terme non linéaire difficile à calculer numériquement. Sous sa forme continue, il s’agit d’un terme intégral prenant en compte l’ensemble des collisions intermoléculaires afin de définir l’évolution temporelle des fonctions de distribution. Un modèle linéarisé et simple est le modèle Bhatnager-Gross-Krook, ou BGK [79], qui s’intéresse à l’évolution de la fonction de distribution vers un équilibre ther-

modynamique avec une certaine relaxation. Sa forme discrète dans le cadre de la modélisation LBM s'écrit :

$$\Omega(f_i) = -\frac{1}{\tau} (f_i - f_i^{(\text{eq})}) \quad (2.3)$$

où la fonction de distribution à l'équilibre $f_i^{(\text{eq})}$ est définie à partir des grandeurs macroscopiques locales du fluide. Une expression détaillée de $f_i^{(\text{eq})}$ est proposée à la section 4.3.1 (équation (4.3), p. 43).

D'un point de vue cinétique, le temps de relaxation τ est lié à la vitesse à laquelle les fonctions de distribution vont atteindre leur équilibre thermodynamique. À l'aide de l'expansion de Chapman-Enskog [77], il est exprimé macroscopiquement en fonction de la viscosité cinématique du fluide ν pour que l'équation de Boltzmann soit équivalente aux équations de conservation de quantité de mouvement :

$$\nu = c_s^2 \left(\tau - \frac{1}{2} \right) \delta t \quad (2.4)$$

où c_s définit la vitesse du son en LBM. Cette dernière dépend du schéma de discrétisation employé et vaut $c_s = \frac{1}{\sqrt{3}} \delta x / \delta t$ pour les schémas D2Q9 et D3Q19.

Bien qu'étant simple à implémenter, l'opérateur BGK souffre de problèmes de stabilité et de glissement numérique [80], ce qui le rend inadapté dans le cadre d'écoulements en régime raréfié. Pour pallier à cette limitation, un opérateur matriciel de collision à plusieurs temps de relaxation, ou opérateur MRT (pour *Multi relaxation times* en anglais), a été développé pour améliorer la stabilité et la précision du modèle [81]. L'opérateur projette les fonctions de distribution discrètes f_i sur l'espace des moments m_i , dont chacun est associé à une grandeur macroscopique physique, et propose une relaxation indépendante de chaque moment en lui associant un temps de relaxation propre. L'expression scalaire de l'équation (2.3) devient alors matricielle pour une relaxation de type MRT :

$$\Omega(f_i) = - \sum_j (\mathcal{M}^{-1} \mathbf{S} \mathcal{M})_{ij} (f_j - f_j^{(\text{eq})}) \quad (2.5)$$

Les matrices de passage \mathcal{M} de l'espace des fonctions de distribution à l'espace des moments et de relaxation \mathbf{S} contenant les différents de temps de relaxation dépendent du schéma de discrétisation en espace des vitesses considéré. Pour plus de détails, le lecteur est invité à se référer respectivement aux chapitres 5 et 6 pour le détail des opérateurs D2Q9-MRT et D3Q19-MRT.

2.1.4 Algorithme de résolution

Le cœur de l'algorithme LBM repose sur un principe de collision-propagation, qui permet de découpler l'évolution des fonctions de distribution à travers les collisions intermoléculaires, et la transmission de cette évolution dans l'espace par l'advection de ces fonctions par leur vitesse moléculaire discrète associée. Par une approximation des termes de dérivation ainsi qu'un changement de variables qui ne sera pas détaillé ici [77], on réécrit l'équation discrète de Boltzmann pour rendre apparent le découplage entre collision et propagation. En l'absence de force externe, cela s'écrit :

$$f_i(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta t, t + \delta t) - f_i(\mathbf{x}, t) = \Omega(f_i) + \delta t F_i \quad (2.6)$$

où $\Omega(f_i)$ peut soit prendre une forme à simple (BGK) ou multiple (MRT) temps de relaxation et F_i est la forme discrète de la contribution de la force externe \mathcal{F} répartie sur les fonctions de distribution discrètes.

L'algorithme LBM suit le cheminement suivant :

- Initialisation : les fonctions de distribution discrètes sont initialisées à l'équilibre thermodynamique en fonction de l'état initial du système.
- Début de la boucle temporelle : on commence par mettre à jour les fonctions de distribution en effectuant la collision :

$$f_i^*(\mathbf{x}, t) = f_i(\mathbf{x}, t) + \Omega(f_i) \quad (2.7)$$

où f_i^* est la fonction de distribution discrète post-collision.

- Connaissant la direction de propagation à l'aide des vitesses discrètes $\boldsymbol{\xi}_i$, on déplace les valeurs post-collision f_i^* aux lattices voisines :

$$f_i(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta t, t + \delta t) = f_i^*(\mathbf{x}, t) \quad (2.8)$$

- À la suite de la propagation, des conditions aux limites doivent être imposées aux abords du domaine fluide de simulation afin de refléter la physique voulue tout en respectant les lois de conservation. L'implémentation des conditions aux limites pertinentes aux écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié sera discutée dans les prochaines sections.
- Les différents ordres du moment de la fonction de distribution permet de retrouver les grandeurs macroscopiques du fluide. En reprenant l'expression discrète de l'équation de Boltzmann, le calcul intégral se réduit à une somme discrète plus pratique à calculer

numériquement. L'expression des différentes grandeurs macroscopiques sous leur forme intégrale et discrète est :

$$\begin{aligned}\rho &= \int f d\xi = \sum_i f_i \\ \rho \mathbf{u} &= \int \xi f d\xi = \sum_i \xi_i f_i\end{aligned}\tag{2.9}$$

- La boucle temporelle s'exécute à nouveau si le critère d'arrêt de l'algorithme n'est pas atteint ; le cas échéant, la simulation numérique est terminée.

Les différentes étapes de l'algorithme présenté ci-dessus définissent le cadre numérique dans lequel les adaptations au modèle LBM standard seront effectuées. Avant de présenter son extension aux mélanges gazeux et au régime raréfié, il semble judicieux ici de recenser les différentes physiques présentes. D'une part, on admet l'existence du phénomène de raréfaction, caractérisé par le nombre de Knudsen. D'autre part, deux phénomènes de transport sont mis en opposition, à savoir la diffusion et l'advection, qui cohabitent pour des mélanges multicomposant. Les modifications apportées au modèle LBM ont pour vocation de traiter non seulement l'aspect raréfié, mais également des écoulements où diffusion et advection sont des phénomènes concurrents. La Figure 2.1 montre qualitativement le régime d'écoulement dans lequel on souhaite que notre modèle puisse s'appliquer. L'adaptation par la LBM du problème multiphysique sera traitée en deux temps : tout d'abord, on introduit l'aspect raréfié par la LBM, et ce, pour un gaz simple composant. Par la suite, le traitement numérique de mélanges gazeux sera discuté.

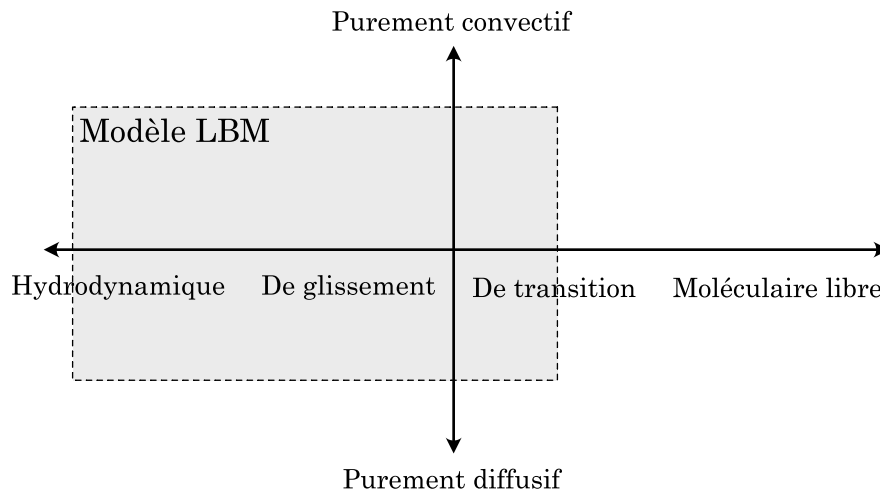


Figure 2.1 Régimes d'écoulement dans lesquels s'inscrit le modèle LBM à développer (en gris). L'axe des abscisses indique le degré de raréfaction et l'axe des ordonnées représente le régime de convection-diffusion pour des écoulements multicomposant.

2.2 Adaptation au régime raréfié

La section 1.2 a introduit les spécificités de l'écoulement raréfié et des effets apparaissant lorsque le nombre de Knudsen est élevé. Puisque l'on s'intéresse principalement au régime de glissement et de transition au vu des applications pratiques potentielles (voir Figure 1.1), les principales modifications à apporter à l'algorithme se concentrent sur la modélisation du glissement et de la couche de Knudsen.

2.2.1 Glissement aux parois solides

La présence d'une vitesse de glissement nécessite un traitement particulier des nœuds fluides au voisinage des nœuds solides. Les deux principales modélisations sont un traitement spécifique des fonctions de distribution selon la même représentation spéculaire ou diffusive des modèles de réflexion proposés par Maxwell. Plus précisément, une fonction de distribution incidente à la paroi solide possèdera trois comportements possibles [26] :

- La fonction discrète incidente rebondit **directement** par rapport à la paroi solide, garantissant un non-glissement aux parois : on parle d'une condition aux limites de **bounce-back** ;
- La fonction discrète incidente rebondit symétriquement à la normale à la paroi solide et garde sa composante de vitesse tangentielle : c'est la condition aux limites de **réflexion spéculaire** ;
- La fonction discrète incidente est répartie sur l'ensemble des directions opposées : c'est la condition aux limites de **réflexion diffusive**.

Une schématisation des différents types de réflexion en LBM est présentée à la Figure 2.2 sur une base de discrétisation de type D2Q9. On remarque la similitude avec la modélisation de Maxwell illustrée à la Figure 1.2. La direction de la réflexion des fonctions de distribution discrètes dépend donc du schéma de discrétisation employé.

Tandis que la condition de bounce-back est usuellement employée pour le comportement gaz/solide en régime hydrodynamique, la modélisation du glissement par la LBM est un mélange de bounce-back et de réflexion diffusive [82] (ceci donne donc la condition DBB, pour *diffuse bounce-back* en anglais), ou bien de bounce-back et de réflexion spéculaire [83] (amenant à la condition CBBSR, pour *combined bounce-back specular reflection* en anglais). À chaque comportement de réflexion est associé un coefficient entre 0 et 1 et définit la proportion de particules participant au phénomène de glissement ou non. Les valeurs des coefficients de glissement sont obtenues en analysant la condition aux limites LBM appliquée sur une plaque plane et en faisant correspondre avec les coefficients du modèle de glissement

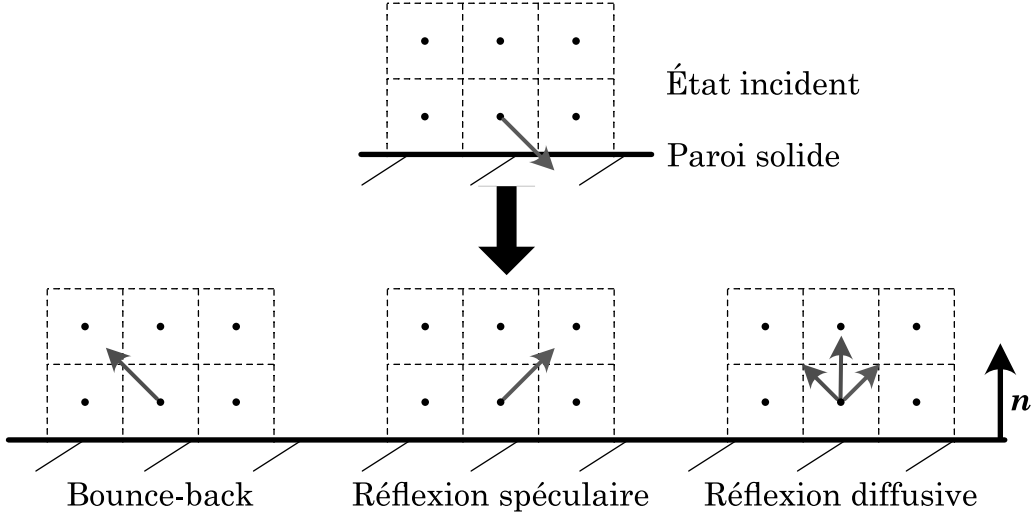


Figure 2.2 Comportements de réflexion d'une fonction de distribution selon un schéma de discrétisation D2Q9.

de Maxwell [84–87].

Les deux conditions aux limites ont été largement employées dans la modélisation du glissement pour différentes géométries [88–91]. Guo et al. [92] ont cependant démontré que les deux conditions aux limites étaient équivalentes et aboutissaient au même glissement en posant les bons coefficients. L'un des avantages de la DBB par rapport à la CBBSR résiderait dans la localité de la condition aux limites [93], la rendant donc plus adaptée pour des géométries non planes.

L'opérateur MRT est également privilégié par rapport à l'opérateur BGK pour supprimer le glissement numérique [85]. Les temps de relaxation supplémentaires permettent de les imposer de sorte à annuler le glissement numérique apparaissant aux parois en raison de la discrétisation [86]. La modélisation de la bonne vitesse de glissement aux parois couplée à l'opérateur de collision MRT a également été étendue à l'ordre 2 pour le glissement de Maxwell [84, 87, 88, 94]. Pour cet ordre, le coefficient de glissement d'ordre 2 $C_{\text{slip},2}$ est pris en compte dans le temps de relaxation τ_q relatif au flux d'énergie dans l'opérateur MRT :

$$\tau_q = 0,5 + \frac{3 + 4\pi C_{\text{slip},2} (\tau - 0,5)^2}{16(\tau - 0,5)} \quad (2.10)$$

où τ est le temps de relaxation relié à la viscosité cinématique du fluide calculé avec l'équation (2.4).

2.2.2 Couche de Knudsen

La zone de non-linéarité entre le cisaillement visqueux et le taux de déformation s'étend sur une épaisseur d'un ordre de grandeur du libre parcours moyen à partir des parois solides et caractérise la couche de Knudsen [6]. Avant de modéliser cette non-linéarité, il faut avant tout inclure l'effet de raréfaction dans le modèle LBM standard.

Selon la théorie cinétique des gaz, il est possible de relier les coefficients de transport macroscopiques au libre parcours moyen qui est lié à la raréfaction de l'écoulement. En modélisant la particule de gaz comme une sphère dure, c'est-à-dire comme une particule de diamètre constant, une expression simple est obtenue [86] :

$$\nu = \sqrt{\frac{2}{3\pi}} \lambda \quad (2.11)$$

En combinant les équations (2.4) et (2.11), on modélise l'effet de raréfaction dans l'algorithme LBM. Le nombre de Knudsen a un effet croissant sur le temps de relaxation : le système prend effectivement plus de temps afin d'atteindre l'équilibre thermodynamique local. Ceci s'explique par la diminution de la fréquence des collisions intermoléculaires. L'inclusion d'un temps de relaxation dépendant du nombre de Knudsen pour simuler des écoulements raréfiés a été largement employé en LBM [26, 94].

Le développement d'une loi de paroi pour exprimer une viscosité effective devient essentiel pour des écoulements en régime de transition. Essayons d'illustrer le problème en considérant un écoulement entre deux plaques planes parallèles infinies distantes d'une hauteur H , qui est utilisée comme grandeur de référence pour le calcul du nombre de Knudsen. Dans le cas où l'écoulement est à un degré de raréfaction extrême, le libre parcours moyen tend vers l'infini et donc le nombre de Kn tendrait aussi vers l'infini. Or, ceci n'est pas observé en pratique. Dans un milieu confiné, à défaut de subir une collision intermoléculaire, la particule de fluide finirait éventuellement par entrer en collision avec la paroi solide.

On pourrait alors donner une valeur limite du libre parcours moyen lorsque l'écoulement est très raréfié. Par exemple, une particule de fluide confiné dans une géométrie de taille caractéristique H ne rencontrerait aucune autre collision que celle avec la paroi solide dans un vide quasi absolu. Cela reviendrait à la valeur limite suivante pour son libre parcours moyen : $\lim_{\text{Kn} \rightarrow \infty} \lambda = H$.

Les collisions gaz-solide définissent aussi bien le comportement des particules que les collisions gaz-gaz dans le régime de transition : c'est pourquoi la relation linéaire entre le cisaillement et le taux de déformation en régime hydrodynamique ne devient plus valide, celle-ci étant

uniquement définie à partir du second type de collisions.

Ainsi, le libre parcours moyen devient « **effectif** » : sa valeur traduit la distance effectivement parcourue par une particule de fluide dans un milieu confiné et dépend de la position dans ce milieu. L'introduction d'un libre parcours moyen effectif impacte également la valeur de la viscosité dynamique du fluide, qui devient elle-même locale si l'on se réfère à l'équation (2.11). Les valeurs effectives de libre parcours moyen λ_e et de viscosité ν_e sont donc liées à leurs valeurs respectives de référence λ_0 et ν_0 en l'absence de parois solides en introduisant une loi de paroi $\psi(\mathbf{x})$:

$$\lambda_e(\mathbf{x}) = \lambda_0 \cdot \psi(\mathbf{x}) \quad (2.12)$$

$$\nu_e(\mathbf{x}) = \nu_0 \cdot \psi(\mathbf{x}) \quad (2.13)$$

Le développement de la loi de paroi a abouti à différentes expressions, obtenues par simulation numérique [95–97], par modélisation du déplacement aléatoire des particules dans toutes les directions possibles dans un domaine délimité [98–102], ou bien en moyennant l'effet non linéaire de la viscosité sur la section de passage de l'écoulement [103]. Les différentes expressions de ψ étant compliquées, elles ne seront pas retranscrites dans ce manuscrit, mais sont disponibles dans le Tableau 3 de la revue de littérature de Wang et al. [26]. Pour illustrer la non-linéarité et la dispersion des différents modèles, la Figure 2.3 présente les profils de certaines des lois de paroi implémentées en LBM pour un écoulement plan entre deux plaques parallèles infinies séparées d'une distance H pour $\text{Kn}_0 = \lambda_0/H = 0,3$. L'introduction de la loi de paroi et du glissement permet d'étendre le modèle LBM à la simulation d'écoulements dans des régimes plus fortement raréfiés [87, 94, 104, 105].

2.3 Traitement des mélanges gazeux en LBM

Le traitement de la raréfaction en LBM présenté plus haut a été réalisé sans aucune hypothèse particulière sur la composition du fluide. La majorité des études numériques des écoulements raréfiés modélisent le fluide par un gaz simple composant. Ceci n'est bien souvent pas le cas en pratique : les gaz de pyrolyse lors de la rentrée atmosphérique sont un mélange de H_2 , H_2O , CH_4 et autres composés phénoliques [106] tandis que le gaz de schiste emprisonné dans les sols poreux est un mélange de CH_4 et de CO_2 [7]. On définit par mélange gazeux toute phase gazeuse composée d'au moins deux composants. Le mélange est miscible ; ainsi il forme un mélange homogène dans des conditions normales de température et de pression.

Différentes approches ont déjà été utilisées afin d'étudier les mélanges multicomposant en LBM. Cependant, des choix doivent être faits en accord avec la physique étudiée afin de

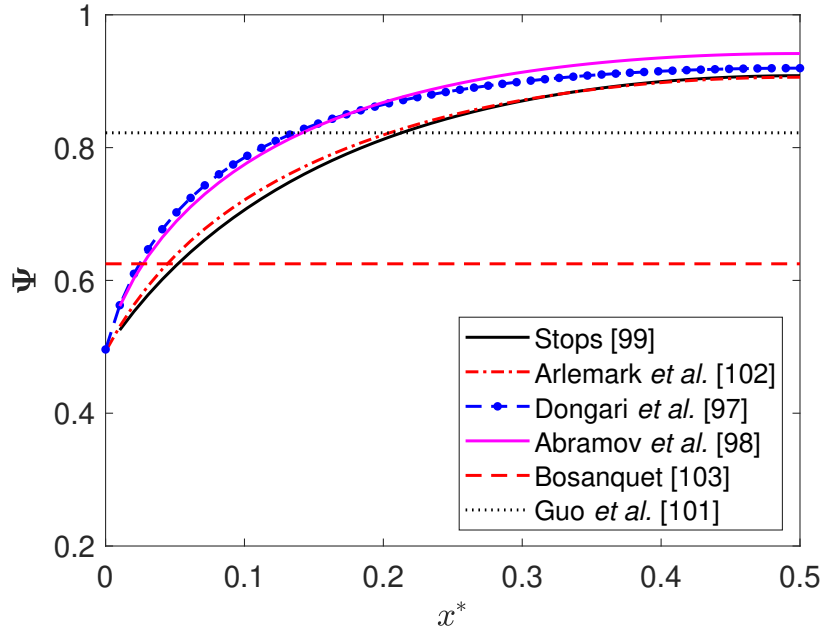


Figure 2.3 Lois de paroi entre deux plaques parallèles infinies en fonction de la distance normalisée $x^* = x/H$. La position $x^* = 0,5$ est à équidistance des deux plaques.

modéliser convenablement les mélanges gazeux en régime raréfié.

2.3.1 Traitement dynamique/passif

Les écoulements multicomposant ont été initialement développés selon une approche passive des espèces composant le mélange. Ainsi, les équations décrivant le mouvement du fluide sont résolues pour le mélange au complet, puis la vitesse résultante est utilisée dans l'équation d'advection-diffusion pour transporter les différentes espèces et recalculer leurs concentrations respectives [107–109]. On dit alors que les espèces sont traitées de manière **passive**, leur fraction est modélisée par un scalaire qui sera transporté par une vitesse calculée en amont. Le découplage entre le calcul des différents composants du mélange et de leur vitesse ne reflète cependant pas l'évolution des mélanges gazeux. En présence d'une phase gazeuse, la fraction des différents composants est directement liée à la pression du fluide par l'équation d'état qui lui est associée (loi des gaz parfaits ou réels) et va avoir un impact sur la dynamique du système. Ainsi, il faut intégrer l'évolution de chaque espèce gazeuse **dynamiquement** dans les équations du mouvement. Dans le cadre de la présente thèse, le traitement dynamique de chaque espèce gazeuse est considéré.

2.3.2 Traitement diffusif/convectif

En présence d'un écoulement gazeux multicomposant, le transport convectif et le transport diffusif coexistent. Les paramètres de l'écoulement et le nombre de Schmidt définissent le type de transport privilégié. Dans le cas purement diffusif, de manière analogue aux équations de Navier-Stokes, l'équation de Boltzmann peut être montrée équivalente à l'échelle macroscopique aux équations de diffusion de Stefan-Maxwell par une expansion de Chapman-Enskog [110, 111]. La modélisation de la diffusion multicomposant par la LBM a été amplement étudiée aussi bien pour de la diffusion ternaire ou quaternaire [112] que pour de la diffusion poreuse [113]. Pour décrire le transport diffusif en régime raréfié, les équations de Stefan-Maxwell sont étendues pour donner le modèle des gaz poussiéreux [114] (ou DGM, pour *Dusty gas model* en anglais). La DGM introduit une espèce supplémentaire fictive et immobile pour modéliser la collision entre la particule de gaz et la paroi solide. En régime raréfié, les collisions gaz-solide représentent une part non négligeable des collisions totales subies par les particules de gaz et modifient leur comportement diffusif à l'échelle macroscopique. On identifie par **coefficient de diffusion de Knudsen** (D_K^k) le coefficient de transport associé à la diffusion moléculaire libre propre à chaque espèce k . Elle est obtenue par la théorie cinétique des gaz à partir des propriétés thermodynamiques du système et des caractéristiques géométriques dans lequel le gaz diffuse [28, 115] :

$$D_K^k = \frac{1}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi m^k}} H \quad (2.14)$$

Finalement le système d'équations résolu par le modèle des gaz poussiéreux s'écrit :

$$\nabla p^k = - \sum_{l=1}^N p \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (u^k - u^l) - \frac{\chi^k u^k}{D_K^k} \quad (2.15)$$

On peut voir l'équation (2.15) comme une généralisation des équations de Stefan-Maxwell quelle que soit la raréfaction de l'écoulement. En régime hydrodynamique, les coefficients de diffusion binaire D^{kl} sont très petits par rapport aux coefficients de diffusion de Knudsen D_K^k : la contribution de la diffusion moléculaire libre est quasi négligeable à la diffusion des espèces. Le rapport des deux coefficients de diffusion s'inverse en régime raréfié (sachant le coefficient de diffusion binaire inversement proportionnel à la pression), si bien que la diffusion moléculaire libre l'emporte. Les coefficients de diffusion binaire et de diffusion de Knudsen pour un mélange équimolaire Air/CO₂ en fonction de la pression sont représentés à la Figure 2.4. En régime fortement raréfié, la valeur du coefficient de diffusion de Knudsen constitue la valeur limite pour caractériser la diffusion des espèces. Une des interpolations

possibles est d'exprimer un coefficient de diffusion binaire **effectif** [116, 117] :

$$D_{\text{eff}}^{kl} = \left[(D^{kl})^c + (D_K^k)^c \right]^{\frac{1}{c}} \quad (2.16)$$

où c est un coefficient à déterminer. Les valeurs effectives des coefficients de diffusion binaire sont également représentées à la Figure 2.4 pour $c = -1$.

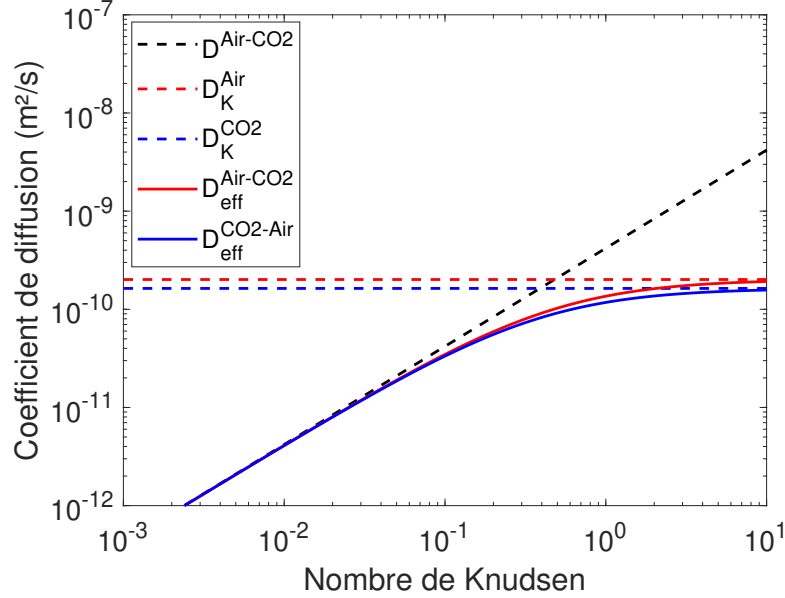


Figure 2.4 Coefficients de diffusion binaire, de Knudsen et effectifs en fonction du nombre de Knudsen pour un mélange équimolaire Air/CO₂. Le nombre de Knudsen est calculé à l'aide de l'équation (1.1) en prenant l'air comme gaz de référence.

Dans le cadre du transport multicomposant purement diffusif, l'inclusion de la diffusion de Knudsen en régime raréfié a également été étudiée numériquement par la LBM [118–121].

L'étude numérique actuelle propose de développer un modèle capable de simuler des mélanges gazeux poussés par gradient de pression. Ainsi, convection et diffusion coexistent dans le transport des différentes espèces. Dans le cadre de ce travail doctoral, le présent modèle devra être capable de combiner les phénomènes raréfiés existants pour un écoulement convectif en présence d'effets diffusifs.

2.3.3 Traitement simple fluide/multifluide

Déoulant du choix de modélisation décrit à la section 2.3.2, l'approche conventionnelle réside dans la résolution des équations hydrodynamiques en considérant une vitesse globale du

mélange couplée aux équations de diffusion de Stefan-Maxwell. Cette approche est nommée « simple fluide », puisqu'elle considère une unique vitesse comme grandeur macroscopique inconnue. Ainsi, le fluide est considéré comme homogène et les vitesses de chaque espèce sont retrouvées par conservation de la quantité de mouvement. La modélisation de cette approche par la LBM existe sous différentes formes pour modéliser les différentes interactions entre particules de gaz. Un premier modèle a intégré les effets visqueux et diffusifs dans un seul opérateur de collision, permettant à chaque espèce d'évoluer vers l'état d'équilibre défini par une vitesse du mélange [122]. Une autre dérivation en LBM a inclus le modèle de collision de Sirovich [123,124] où un opérateur de collision supplémentaire est ajouté pour prendre en compte la diffusion binaire découlant des interactions interespèces. Cette interprétation des collisions a été améliorée et rigoureusement reliée par la suite aux équations macroscopiques par une analyse de Chapman-Enskog [125,126]. Une autre approche numérique considère un seul opérateur de collision nécessitant la relaxation à temps multiples (MRT) [127] où diffusion et viscosité affectent simultanément l'évolution du mélange. Elle suppose que la vitesse d'équilibre de chaque espèce résulte de la somme d'une vitesse convective dominante et d'une vitesse diffusive de faible amplitude [128,129]. Cette dernière approche a également été étendue au régime raréfié [130] en incluant les différentes adaptations de l'algorithme LBM présenté à la section 2.2. Les résultats numériques montrent la présence de la séparation de la phase gazeuse dans de simples microcanaux [7,131].

Au début des années 2000, une approche alternative basée sur la résolution des équations hydrodynamiques spécifiques (ici, « spécifique » désigne pour chaque espèce du mélange) a émergé. Développée par Kerkhof et al. [10,132], elle utilise une nouvelle formulation de l'équation de Boltzmann où la fonction de distribution à l'équilibre se base sur les grandeurs macroscopiques individuelles plutôt qu'une vitesse de mélange. Par une analyse de Chapman-Enskog, les équations de conservation pour chaque espèce sont retrouvées, contrairement aux équations de conservation pour le mélange par l'approche « simple fluide ». Le système d'équations permet de calculer les vitesses spécifiques et un coefficient de viscosité dynamique partielle propre à chaque espèce est associé au terme visqueux de chaque équation de conservation. Le terme de diffusion binaire est introduit comme une force externe couplant les différentes équations aux dérivées partielles et dont l'expression se base sur les équations de Stefan-Maxwell données à l'équation (1.7). Cette approche est appelée « multifluide », puisque chaque fluide est défini par des grandeurs macroscopiques qui lui sont propres. De ces valeurs découlent les quantités équivalentes pour le mélange à partir des simples lois de mélange, tandis que le raisonnement est inversé pour l'approche « simple fluide ». Pour justifier une telle modélisation, on peut reprendre l'expérience simple imaginée par Vienne dans sa thèse de doctorat [69]. Supposons le mélange de deux composants gazeux dans un

tube dont l'entrée est divisée en deux parties par une plaque. Chaque composant pur s'écoule individuellement dans un des deux compartiments du tube en entrée et suit les équations hydrodynamiques. À la fin de la plaque de la séparation, les deux gaz se croisent dans le tube et le mélange a lieu. Lors du mélange, l'approche simple fluide considère uniquement une vitesse de mélange déterminée par une moyenne des concentrations des deux espèces. Toutefois, le mélange n'est pas instantanément homogène en aval de la plaque de séparation et modéliser l'état transitoire du mélange entre les deux espèces nécessiterait de traiter chaque espèce avec sa vitesse individuelle. Une autre contradiction dans l'approche simple fluide est démontrée dans le travail de Kerkhof et al. [10], en formalisant l'expérience de contre diffusion de Remick et Geankoplis [133]. De l'hélium et du diazote diffusent dans une direction opposée dans un tube à pression constante. Par les simplifications appropriées, les auteurs montrent que la résolution de l'équation de conservation de quantité de mouvement pour le mélange considéré dans l'approche simple fluide conduit à une vitesse nulle pour chaque espèce, ce qui est en contradiction avec l'observation.

Dans le cadre des écoulements gazeux raréfiés, la modélisation de la séparation de la phase gazeuse nécessiterait de calculer individuellement les vitesses de chaque espèce, ce que l'approche simple fluide ne permet pas. Toutefois, il ne s'agit que d'une hypothèse de modélisation qui est difficilement observable en régime hydrodynamique puisque les deux approches sont équivalentes. En effet, les vitesses spécifiques sont égales en régime hydrodynamique et par extension sont égales à la vitesse du mélange. Concernant le choix de l'approche, celui-ci n'est pas définitif et nécessitera une étude approfondie dans le cadre de cette thèse.

Le couplage des différents phénomènes physiques apparaissant en régime raréfié avec la variété des traitements possibles pour des mélanges gazeux demeure un problème ouvert en modélisation numérique par la LBM. Les différentes contributions proposées dans cette thèse ont pour but d'atteindre l'objectif principal suivant :

Objectif principal : Développer un modèle de Boltzmann sur réseau capable de simuler des écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié.

La poursuite de cet objectif sera organisée en trois thèmes, dont chacun a abouti à la soumission d'un article scientifique. Ces trois thèmes sont détaillés par la suite.

CHAPITRE 3 DÉMARCHE DE L'ENSEMBLE DU TRAVAIL DE RECHERCHE

Ce chapitre présente la stratégie employée pour implémenter les différents développements numériques dans le modèle de Boltzmann sur réseau. Les hypothèses de modélisation sont d'abord introduites afin de délimiter le cadre numérique dans lequel est développé le modèle. Ensuite, afin d'atteindre notre objectif principal, celui-ci est subdivisé en trois thèmes distincts, mais logiquement reliés. Pour chacun des thèmes, les motivations de recherche et la méthodologie sont présentées de même que les contributions apportées. Les éléments présentés dans ce chapitre constituent les principaux axes de travail ayant abouti à la rédaction d'un article scientifique par thème qui le traite de manière plus approfondie.

3.1 Hypothèses de modélisation

Il serait présomptueux d'affirmer que le modèle LBM présentement développé sera capable de simuler des écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié, quelles que soient les conditions d'écoulement. La complexité de la physique étudiée nécessite la formulation d'hypothèses délimitant la plage de validité du modèle numérique et des phénomènes physiques qui sont volontairement négligés :

- Les écoulements de mélanges gazeux sont supposés **incompressibles**. Il s'agit d'une condition nécessaire pour que l'équation de Boltzmann discrète résolue par la LBM soit équivalente aux équations macroscopiques de conservation et soit capable de bien simuler le comportement hydrodynamique du mélange. Le taux de compressibilité est déterminé par un pseudo nombre de Mach (Ma) :

$$\text{Ma} = u/c_s \tag{3.1}$$

où u est la vitesse macroscopique du fluide et c_s est la vitesse du son de la grille discrétisée en LBM et est donnée à la section 2.1.3 (p. 16). On peut généralement négliger les effets compressibles quand $\text{Ma} < 0,3$ et cette limite ne sera pas dépassée dans l'ensemble des simulations [77]. En régime raréfié toutefois, il y a une corrélation directe entre la raréfaction et la compressibilité [6] :

$$\text{Kn} = \frac{\lambda}{H} \sqrt{\frac{\pi\gamma}{2}} \frac{\text{Ma}}{\text{Re}} \tag{3.2}$$

avec γ le coefficient adiabatique du gaz.

On peut voir que l'augmentation de la raréfaction incite à l'apparition d'effets compressibles pour un nombre de Reynolds donné. Pour garder l'hypothèse incompressible valide en régime raréfié, les conditions de simulation seront réajustées de sorte à garantir $Ma < 0,3$.

- Les écoulements de mélanges gazeux sont simulés de manière **isotherme**. Ainsi, l'écoulement en régime raréfié ne comprend pas le glissement thermique aux parois solides mentionné à la section 1.2.5 (p. 7). De même, l'absence de gradient de température nous permet de négliger les effets croisés de diffusion en présence de fluide multicomposant [134, 135]. La diffusion des espèces en présence d'un gradient de température, appelée **effet Dufour**, ainsi que la diffusion thermique en présence d'un gradient de concentration, appelée **effet Soret**, sont tous les deux négligés.
- Les espèces simulées seront considérées comme **non-polaires** : la diffusion de surface mentionnée à la section 1.2.5 (p. 7) est négligée.
- En régime hydrodynamique, les effets inertiels peuvent modifier la perméabilité intrinsèque d'un milieu poreux. Ces effets apparaissent lorsque le nombre de Reynolds augmente et la force de traînée additionnelle est exprimée par une loi de Darcy-Forchheimer [13, 136]. Pour s'assurer que la perméabilité apparente varie par rapport à la perméabilité intrinsèque en raison des effets raréfiés et non pas d'effets inertiels, les écoulements dans les milieux poreux seront simulés de sorte qu'ils soient **rampants**, c'est-à-dire pour des nombres de Reynolds proches de l'unité. Cette restriction sur le nombre de Reynolds va de pair avec celle sur le nombre de Mach présenté à l'équation 3.1.

3.2 Thème 1 : Évaluer les performances numériques des modélisations de mélange gazeux en régime hydrodynamique avec la LBM

3.2.1 Motivations

Le travail réalisé concerne le choix du traitement du mélange gazeux par une approche simple fluide ou multifuide. En effet, l'approche simple fluide a déjà été adaptée au régime raréfié [7, 130, 131]. Toutefois, une analyse préliminaire du modèle montre son inaptitude à étudier la séparation de la phase gazeuse à l'aide des débits spécifiques. En effet, seule la vitesse du mélange est correctement modélisée par l'approche simple fluide et l'existence de vitesses spécifiques dans l'algorithme provient d'une construction numérique, mais n'est pas physiquement reliée au comportement réel [137]. En parallèle, l'approche multifuide a été récemment développée dans le cadre de la LBM [138] en régime hydrodynamique. Cette modélisation permettrait de retrouver les bonnes vitesses spécifiques puisque la théorie sous-jacente se base

sur la résolution des équations de conservation de la quantité de mouvement pour la vitesse spécifique plutôt qu'une vitesse moyenne du mélange [10].

Les bases théoriques menant aux deux modélisations LBM proposées (simple fluide et multifluide) diffèrent déjà en régime continu. Par une analyse de Chapman-Enskog issue de l'équation de Boltzmann, l'équation de conservation pour la quantité de mouvement par unité de volume obtenue pour un mélange binaire k - l s'écrit comme suit pour une approche simple fluide [139] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\rho^k \mathbf{u}^k)}{\partial t} + \mathbf{u}^{\text{mix}} \nabla \cdot (\rho^k \mathbf{u}^{\text{mix}}) = & -\nabla p^k + \nabla \cdot \left\{ \nu^{\text{mix}} \left[\nabla (\rho^k \mathbf{u}^k) + \left(\nabla (\rho^k \mathbf{u}^k)^T \right) \right] \right\} \\ & - p \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l) + \mathbf{F}^k \end{aligned} \quad (3.3)$$

avec ν^{mix} et \mathbf{u}^{mix} respectivement la viscosité cinématique et le vecteur vitesse du mélange et s'écrit comme suit pour une approche multifluide [132] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial (\rho^k \mathbf{u}^k)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho^k \mathbf{u}^k \mathbf{u}^k) = & -\nabla p^k + \nabla \cdot \left\{ \eta^k \left[\nabla \mathbf{u}^k + \left(\nabla \mathbf{u}^k \right)^T \right] \right\} \\ & - p \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l) + \mathbf{F}^k \end{aligned} \quad (3.4)$$

À la vue des équations 3.3 et 3.4, les principales différences apparaissent dans le terme d'advection et le tenseur de contraintes. Dans le terme d'advection, le produit spécifique $\rho^k \mathbf{u}^k$ est advecté par la vitesse du mélange \mathbf{u}^{mix} dans l'approche simple fluide, mais par sa propre vitesse spécifique \mathbf{u}^k dans l'approche multifluide. Le tenseur de contraintes est lui caractérisé par une viscosité cinématique du mélange ν^{mix} dans l'approche simple fluide plutôt que par la viscosité cinématique partielle ν^k dans l'approche multifluide.

Puisque la modélisation des mélanges gazeux choisie pourrait influencer les résultats subséquents en régime raréfié, on propose de comparer numériquement les deux approches afin de justifier celle qui sera retenue par la suite. Les modèles de Boltzmann sur réseau associés aux deux approches sont ainsi évalués en régime hydrodynamique et les résultats obtenus ont fait l'objet d'un article scientifique intitulé « **Comparative study of multicomponent Lattice Boltzmann models for binary mixture flows** » (publié le 6 octobre 2021 dans *International Journal of Modern Physics C*) retranscrit dans son intégralité au chapitre 4.

La principale contribution apportée est avant tout d'ordre théorique. Les résultats numériques obtenus permettent de définir les plages d'écoulement où les deux approches sont identiques ou non. On peut mentionner que des résultats numériques sont identiques dans les cas où

la vitesse diffusive (induite par gradient de concentration) est faible par rapport à la vitesse convective (induite par gradient de pression) et diffèrent lorsque la vitesse diffusive est plus importante. L'approche simple fluide a été développée pour la méthode de Boltzmann sur réseau en supposant une vitesse convective dominante, tandis qu'aucune hypothèse n'a été émise pour développer l'approche multifluide. Les phénomènes visqueux étant atténués en régime raréfié en raison de la diminution des collisions intermoléculaires, il est finalement suggéré d'utiliser l'approche multifluide pour simuler des mélanges gazeux en régime raréfié.

3.2.2 Méthodologie

Pour construire notre discussion sur le choix entre les deux approches de modélisation multicomposant, les deux modèles de Boltzmann sur réseau ont été implémentés et appliqués à différentes simulations. Les modèles numériques proviennent directement des auteurs originaux, à savoir Asinari et al. pour l'approche simple fluide [129] et Vienne et al. pour l'approche multifluide [138]. Cette dernière approche a été modifiée en intégrant un opérateur de collision de type MRT pour améliorer la stabilité numérique sans modifier la modélisation multicomposant du fluide.

Les différentes simulations numériques effectuées sont réalisées à chaque fois pour les deux approches en considérant un domaine de simulation bidimensionnel. Seuls des mélanges binaires, c'est-à-dire des écoulements à deux composants, sont considérés. Les simulations numériques incluent :

- Un problème de diffusion pure : le transport diffusif en l'absence de gradient de pression est étudié en faisant varier le ratio de masse moléculaire des deux composants du mélange binaire. La précision et l'ordre de convergence des deux modèles pour la diffusion sont également évalués. (section 4.4.1, p. 50)
- Un écoulement de Poiseuille plan bidimensionnel est simulé. De ce cas test, on vérifie d'abord le principe d'indifférentiabilité (section 4.4.3, p. 54), puis l'ordre de convergence des deux approches (Figure 4.5, p. 56). Les résultats numériques sont vérifiés auprès des solutions analytiques respectives aux deux approches.
- Enfin, une étude paramétrique en fonction du nombre de Schmidt et du ratio de masse moléculaire est réalisée pour les deux modélisations multicomposant. Les régimes d'écoulement étudiés s'étendent du transport convectif dominant au transport de convection-diffusion afin de pointer les similarités et les différences dans le traitement des mélanges gazeux dans ces régimes. (section 4.4.4, p. 56)

À ce stade du manuscrit, le lecteur est invité à se référer au chapitre 4 pour avoir une compréhension exhaustive des travaux réalisés relatifs au Thème 1.

3.3 Thème 2 : Développer un modèle de Boltzmann sur réseau multicomposant pour des mélanges gazeux en régime raréfié selon l’approche multifluide.

3.3.1 Motivations

Les conclusions du Thème 1 montrent la pertinence de modéliser le mélange gazeux par une approche multifluide pour des écoulements raréfiés. De plus, la construction des équations de Boltzmann sur réseau selon cette approche est semblable aux équations pour un gaz pur, facilitant ainsi l’adaptation au régime raréfié.

Le nouveau modèle est développé dans un premier temps pour un domaine bidimensionnel et décrit en détail dans l’article scientifique intitulé « **Lattice Boltzmann modeling of miscible multicomponent gas mixtures in the rarefied regime** » (soumis le 04 avril 2022 dans *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*) retranscrit dans son intégralité au chapitre 5.

Les contributions apportées dans ce travail sont d’ordre numérique. L’algorithme de Boltzmann sur réseau est modifié pour prendre en compte la raréfaction du mélange. Les modifications comprennent des conditions aux limites de glissement aux parois solides, un opérateur de collision de type MRT dépendant du nombre de Knudsen et l’implémentation d’une loi de paroi pour le calcul d’une viscosité effective locale. Il faut mentionner que la contribution ne concerne pas le développement de l’aspect raréfié en LBM, celui-ci ayant été largement étudié pour des gaz purs, mais bien son couplage avec le modèle multicomposant en adoptant l’approche multifluide.

Les résultats numériques démontrent la capacité du nouveau modèle numérique à étudier la séparation de la phase gazeuse à l’aide des grandeurs macroscopiques de chaque espèce composant le mélange.

3.3.2 Méthodologie

L’implémentation du nouveau modèle numérique nécessite plusieurs clarifications. La première porte sur la définition du nombre de Knudsen. En effet, il s’agit d’un nombre défini par l’utilisateur et dont la valeur peut varier fortement en fonction des paramètres de référence utilisés, quand bien même il s’agit du même cas de simulation. Cette situation est mise en lumière à la section 5.5.2 du chapitre 5 (p. 81). De plus, la présence d’une espèce additionnelle doit également être considérée dans le modèle raréfié. Si l’on regarde le libre parcours moyen d’une espèce donnée d’un mélange en régime raréfié, sa valeur sera forcément plus faible que dans le cas d’un composant pur, puisque son libre parcours moyen se verra d’autant plus

réduit en raison de la présence de l'autre espèce en présence. Dans cette thèse, la raréfaction est intégrée dans l'algorithme LBM comme suit.

Le nombre de Knudsen pour chaque espèce est directement calculé selon l'expression originelle du libre parcours moyen représentant la distance moyenne parcourue entre deux collisions successives. Dans le cas d'un gaz pur, cela s'écrit [28] :

$$\lambda = \frac{\bar{v}_{ave}}{z} \quad (3.5)$$

où \bar{v}_{ave} exprime la vitesse moyenne thermodynamique du gaz et z la fréquence de collision intermoléculaire.

Dans le cas d'un mélange gazeux, la fréquence de collision d'une espèce k donnée est la somme des fréquences de collision avec toutes les espèces en présence [28]. Le libre parcours moyen de l'espèce k , noté λ^k , s'écrit alors :

$$\lambda^k = \frac{\bar{v}_{ave}^k}{\sum_l z^{kl}} \quad (3.6)$$

où \bar{v}_{ave}^k exprime la vitesse moyenne thermodynamique de l'espèce gazeuse k et z^{kl} désigne la fréquence de collision intermoléculaire entre les espèces k et l .

Si l'on se réfère à l'équation 3.6, l'expression du libre parcours moyen spécifique λ^k est totalement indépendante des coefficients de transport macroscopiques et est défini par le comportement microscopique réel des particules de gaz. En parallèle, le coefficient de viscosité dynamique partiel η^k présent dans les équations de conservation de l'approche multifluide (voir l'équation 3.4, p. 30) est déterminé par la combinaison des coefficients de viscosité pure définis par la théorie cinétique des gaz [140] et la loi de mélange de Wilke pour retrouver la viscosité du mélange [10, 138]. L'intégration du nombre de Knudsen dans les opérateurs de collision spécifiques est complétée en substituant le nombre de Knudsen calculé par l'équation 3.6 dans l'expression de la viscosité dynamique partielle. Enfin, une simple loi de mélange de Dalton permet d'exprimer le nombre de Knudsen du mélange [28] :

$$\lambda^{mix} = \sum_k \chi^k \lambda^k \quad (3.7)$$

Les équations faisant le lien entre le nombre de Knudsen et les coefficients de viscosité partielle et du mélange sont détaillées à la section 5.4.1 (p. 72) du chapitre 5. En plus de la viscosité, la diffusion binaire est également reliée à la raréfaction par la théorie cinétique des gaz (équation 5.32, p. 75).

Pour étendre la modélisation LBM au régime de transition, une loi de paroi ψ exprimée sous une forme moyennée de Bosanquet est introduite [95] :

$$\psi(\mathbf{x}) = \frac{1}{1 + C_\psi \text{Kn}^{\text{mix}}(\mathbf{x})} \quad (3.8)$$

où C_ψ est un coefficient empirique et $\text{Kn}^{\text{mix}}(\mathbf{x})$ le nombre de Knudsen du mélange considéré en fonction des paramètres locaux d'écoulement à la position \mathbf{x} .

L'équation 3.8 comporte un coefficient empirique contrairement à la loi de paroi initiale qui ne possède pas de paramètre libre [95]. Cette modification est liée au caractère multicomposant du fluide : aucune donnée de littérature n'a été trouvée nous permettant d'affirmer que la loi de paroi est identique pour un fluide simple ou multicomposant. Cette observation initialement mentionnée dans les travaux de Ren et al. [7] est donc généralisée ici. Une discussion détaillée sur la forme de la loi de paroi utilisée ici est disponible à la section 5.4.2 (p. 75).

Enfin, une discussion portant sur la bonne condition aux limites de glissement à utiliser est proposée. Deux solutions équivalentes sont proposées pour modéliser le glissement aux parois, à savoir les conditions aux limites de *diffuse bounce-back* (DBB) et de *combined bounce-back specular reflection* (CBBSR) décrites à la section 2.2.1 (p. 19). Toutefois, dans le cas d'un mélange gazeux, le système est contraint par les caractéristiques moléculaires des différentes espèces qui doivent être correctement dimensionnées en unités LBM par rapport à l'espèce de référence. Cette remise à l'échelle de certains coefficients conduit éventuellement à une modélisation non physique du glissement aux parois pour la condition aux limites DBB. La condition aux limites CBBSR est ainsi privilégiée à la condition aux limites DBB et ce choix est discuté à la section 5.4.4 (p. 77).

Le modèle numérique est appliqué à une géométrie bidimensionnelle délimitée par deux plaques parallèles infinies. Les différentes simulations sont réalisées :

- Un écoulement de gaz pur en régime raréfié : en imposant les deux espèces du mélange d'être identiques, le principe d'indifférentiabilité et le profil de vitesse validé par rapport à la solution analytique avec une condition aux limites de glissement. Une étude de convergence est également réalisée. (section 5.5.1, p. 80)
- Un écoulement d'un mélange équimolaire He-Ar dans un long microcanal avec un fort gradient de pression : pour vérifier la performance de notre modèle par rapport au modèle multicomposant raréfié en LBM [7] déjà existant, le même cas test est réalisé. Les résultats numériques présentés sont les distributions de la fraction molaire de He et de la pression totale le long du microcanal et sont comparés aux données

de référence [8] et au modèle LBM de comparaison. Le phénomène de séparation de la phase gazeuse est souligné par la distribution non linéaire de He malgré une concentration habituellement constante en régime continu. (section 5.5.2, p. 81)

- Les profils de vitesse pour des mélanges équimolaires He-Xe et Ne-Ar sont présentés pour Kn variant entre 0.1 et 0.2. Les résultats sont comparés à la solution analytique dérivée de l'approche multifluide de Kerkhof et al. [10] avec des conditions aux limites de glissement et les résultats numériques obtenus par la méthode des vitesses discrètes (ou DVM, pour *Discrete velocity method* en anglais) basée sur le modèle cinétique de McCormack [9]. Le phénomène de séparation de la phase gazeuse est souligné par l'écart apparent des profils de vitesse spécifique. (section 5.5.3, p. 84)
- Une étude paramétrique est réalisée dans la même géométrie pour évaluer le degré de séparation de la phase gazeuse en régime raréfié. Le phénomène est mesuré en observant le rapport des débits volumiques spécifiques. Les influences de la fraction molaire et du ratio de masse moléculaire entre les différentes espèces composant le mélange (seuls des mélanges binaires sont considérés) sont étudiées. (section 5.5.4, p. 87)

À ce stade du manuscrit, le lecteur est invité à se référer au chapitre 5 pour avoir une compréhension exhaustive des travaux réalisés relatifs au Thème 2.

3.4 Thème 3 : Développement d'un modèle de Boltzmann sur réseau tridimensionnel pour des mélanges gazeux en régime raréfié incluant la diffusion de Knudsen

3.4.1 Motivations

Le modèle développé dans le Thème 2 est capable de simuler des mélanges gazeux en régime raréfié tout en capturant les bonnes quantités macroscopiques de chaque composant gazeux. Ce modèle comporte toutefois plusieurs limites qui sont résolues dans ce dernier thème.

La première concerne la loi de paroi : celle-ci est dépendante d'un coefficient empirique et les données de la littérature ne nous permettent pas de déterminer les paramètres d'influence sur ledit coefficient. Il faudrait donc se tourner vers une loi de paroi basée sur des considérations géométriques, à partir de la distance effective de la particule de fluide aux parois solides environnantes.

La seconde limite porte sur l'absence du traitement de la diffusion de Knudsen. Pour un gaz simple composant, il est difficile d'inclure l'effet de la diffusion de Knudsen. D'une part, le mécanisme de transport est associé aux collisions avec les parois solides. À la vue de l'équa-

tion discrète de Boltzmann, ces collisions sont difficilement modélisables puisque l'opérateur de collision ne traite que les collisions intermoléculaires. D'autre part, lors de la modélisation du glissement aux parois, il est difficile de déterminer la proportion de fluide dont le mécanisme de transport est lié au glissement par rapport à la diffusion de Knudsen. Ce couplage entre deux mécanismes de transport différents (l'un est de source visqueuse, l'autre est de source diffusive) est expliqué par la théorie cinétique des gaz [28, 117]. En effet, il y a une corrélation directe entre la viscosité cinématique et le coefficient de diffusion de Knudsen ce qui rend difficile la distinction entre les deux mécanismes lorsqu'est développé le modèle de Boltzmann sur réseau. Une des solutions possibles est l'inclusion de ce terme d'autodiffusion dans l'équation de Boltzmann [141] qui modifie la vitesse à l'équilibre lors de la collision dans l'algorithme LBM [142] :

$$\mathbf{u}^{\text{eq}} = \mathbf{u} + D_{\text{auto}} \frac{\nabla \rho}{\rho} \quad (3.9)$$

où D_{auto} est le coefficient d'auto-diffusion traduisant la diffusion d'une espèce dans elle-même. Cette difficulté s'efface dans le cadre des mélanges gazeux. Le découplage des deux mécanismes de transport est apparent puisque la viscosité est intégrée dans l'algorithme LBM à travers l'opérateur de collision, pendant que la diffusion binaire est introduite sous la forme d'une force externe. L'inclusion du transport selon la diffusion de Knudsen est plus simple à implémenter et permet de simuler des écoulements gazeux plus fortement raréfiés ($\text{Kn} > 2$), où la diffusion moléculaire libre contribue significativement au débit total du gaz.

La dernière limite porte sur la modélisation des problèmes d'écoulements multicomposant. Les études existantes se focalisent principalement sur des géométries simples comme des microcanaux. Or, les écoulements raréfiés de mélanges gazeux existent en pratique dans des géométries plus complexes, comme les membranes de microfiltration [20] ou les boucliers thermiques poreux [33]. Différentes études [14, 143, 144] ont montré l'impact de la géométrie sur l'intensité des effets raréfiés dans le calcul de la perméabilité apparente (équation 1.6, p. 9). Or, ces dernières étant principalement portées sur des gaz purs, le comportement pour un mélange gazeux reste à explorer.

L'identification et la résolution des problèmes de modélisation mentionnés ci-dessus ont été plus longuement discutées dans l'article scientifique intitulé « **Lattice Boltzmann model for rarefied gaseous mixture flows in three-dimensional porous media including Knudsen diffusion** » (soumis le 16 mai 2022 dans *Physical Review Fluids*) retranscrit dans son intégralité au chapitre 6.

Les principales contributions apportées concernent les modifications numériques apportées au modèle LBM pour résoudre les différentes limites identifiées. Parmi les simulations réalisées,

la comparaison avec des mesures expérimentales de débit massique en régime raréfié pour des mélanges gazeux constitue également une contribution intéressante, aucune validation de la sorte n'ayant été observée dans la littérature à notre connaissance. L'étude des mélanges gazeux s'écoulant dans des milieux poreux en régime raréfié montre que la géométrie affecte le calcul de la perméabilité apparente du mélange gazeux, mais a une sensibilité différente en fonction du mélange considéré.

3.4.2 Méthodologie

Plusieurs modifications de l'algorithme développé dans le Thème 2 ont donc été opérées. Tout d'abord, la loi de paroi moyennée par une expression de Bosanquet [94] est remplacée par une loi de paroi locale obtenue par lancer de rayons. L'algorithme de calcul développé par Tucny durant sa recherche doctorale [145] discrétise l'espace des directions possiblement prise par la particule de fluide par des « rayons », dont la longueur augmente jusqu'à frapper une paroi solide ou bien une extrémité du domaine de simulation. La moyenne de la distance parcourue par l'ensemble des rayons définit le libre parcours moyen effectif λ_e parcouru par la particule à la position locale et permet de définir un coefficient de viscosité local à l'aide de l'équation 2.11. Cette expression géométrique permet de caractériser plus précisément le confinement des particules de fluide en régime raréfié dans des géométries complexes.

Pour intégrer l'effet de diffusion de Knudsen dans le modèle numérique, des coefficients de diffusion binaire effectifs sont développés à la section 6.3.4 du chapitre 6 (p. 110). À partir des valeurs limites de la diffusion d'une espèce donnée du régime hydrodynamique ($\text{Kn} \rightarrow 0$) au régime moléculaire libre ($\text{Kn} \rightarrow \infty$), la valeur effective du coefficient de diffusion binaire D_e^{kl} se situe entre les deux. On applique ici la moyenne proposée par Dongari et al. [117] :

$$D_e^{kl} = \left[(D^{kl})^c + (D_K^k)^c \right]^{\frac{1}{c}} \quad (3.10)$$

où le coefficient c a été fixé à « -2 » dans la modélisation LBM actuelle.

Il faut finalement souligner que le Thème 3 développe le modèle pour des géométries tridimensionnelles et poreuses. L'adaptation des conditions aux limites de glissement n'étant pas directe en LBM, une implémentation de la condition aux limites CBBSR déjà appliquée dans le Thème 2 est étendue aux géométries arbitraires et tridimensionnelles à la section 6.3.5 (p. 111).

Le nouveau modèle LBM tridimensionnel est appliqué aux cas de simulation suivants :

- Un écoulement de Poiseuille cylindrique en régime raréfié pour un mélange He/Ar : les profils de vitesse spécifiques obtenus numériquement sont vérifiés par rapport aux

solutions analytiques [10] dans les régimes de glissement et de transition. (section 6.4.1, p. 113)

- Les débits massiques pour des mélanges binaires calculés numériquement sont validés par rapport à des mesures expérimentales dans de longs microcanaux. Les résultats de comparaison consistent en un mélange He-Ar en différentes proportions qui s'écoulent dans des microcanaux. Ces mesures sont le fruit de travaux de recherche doctorale de Pitakarnnop [146] en 2009 et de Szalmás [147] en 2012, respectivement pour des microcanaux à section rectangulaire et trapézoïdale. Les mélanges gazeux s'écoulent en fixant la pression de sortie à des valeurs de référence (entre 2 et 15 kPa) et différents ratios de pression sont considérés. (section 6.4.2, p. 116)
- Une étude paramétrique des mélanges gazeux binaires dans un milieu poreux est réalisée dans le but d'observer la variation de perméabilité spécifique en fonction de divers paramètres d'influence de la simulation. La présence d'un milieu poreux ajoutant des paramètres ajustables supplémentaires, on limite le nombre de paramètres libres en imposant la forme du milieu comme un arrangement en quinconce de sphères, représenté à la Figure 6.9 (p. 120). La porosité étant le paramètre géométrique d'influence étudié, celle-ci est changée à partir du diamètre des sphères. Les autres paramètres d'influence étudiés sont le taux de raréfaction et la composition du mélange gazeux. L'impact des effets raréfiés est mesuré à travers la perméabilité apparente et la séparation de la phase gazeuse est évaluée en analysant l'évolution du rapport des perméabilités spécifiques en fonction du taux de raréfaction. (section 6.4.3, p. 119)

À ce stade du manuscrit, le lecteur est invité à se référer au chapitre 6 pour avoir une compréhension exhaustive des travaux réalisés relatifs au Thème 3.

CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : COMPARATIVE STUDY OF MULTICOMPONENT LATTICE BOLTZMANN MODELS FOR BINARY MIXTURE FLOWS.

Michel Ho, Sami Ammar, Sébastien Leclaire, Marcelo Reggio and Jean-Yves Trépanier -
publié le 6 octobre 2021 dans *International Journal of Modern Physics C*.

Pour citer : Ho, M., et al. “Comparative study of multicomponent Lattice Boltzmann models
for binary mixture flows.” *International Journal of Modern Physics C*, vol. 33, n° 3, 2022,
<https://doi.org/10.1142/S0129183122500346>

4.1 Abstract

Two lattice Boltzmann method (LBM) models for binary mixture flows are numerically compared. The first model solves the Navier-Stokes equations within the incompressible limit and considers the mixture as one single fluid. A multi-relaxation time (MRT) collision operator tunes the fluid diffusivity independently of the fluid viscosity. The second model emerges from a different theoretical derivation of the kinetic theory, where the governing equations are recovered each species of the mixture. A source term in the LBM defines the interspecies friction force and couples the species of the mixture. A pure diffusion flow and a 2D plane Poiseuille binary mixture flow verify both models in the incompressible limit where diffusive and viscous transport occur. The influence of molecular mass ratio, dynamic viscosity ratio, and Schmidt number on species and mixture flow behavior is investigated. The numerical results show good agreement against their respective analytical solutions and capture the deviation between the velocity profiles according to the flow regime. The present numerical study underlines the difference between the models as a function of the flow regimes which was observed from the macroscopic governing equations.

Keywords : Lattice Boltzmann method, Binary mixtures, Interspecies friction force, Viscous diffusive mechanisms

4.2 Introduction

Numerical studies of multicomponent gas mixtures are helpful to better understand complex flows in various applications such as catalytic reactions [109, 148–150], flows in porous media [7, 151] mixing [129, 152, 153] or combustion [107, 108, 154, 155] processes. Generally, most real fluids in the physical world are not composed of one pure species, but are rather a mix-

ture of several species: for instance, atmospheric air is a homogeneous mixture of nitrogen and oxygen.

Based on a discrete form of the mesoscopic Boltzmann equation, the lattice Boltzmann method (LBM) recovers the macroscopic fluid behavior [156] and simulates multi-physics flows with competing flow mechanisms [77, 87, 90, 93, 157–159]. Therefore, the LBM is a suitable and efficient CFD approach for multicomponent flow modeling.

A simple multicomponent treatment in the LBM is to compute the fluid velocity with the Navier-Stokes equations, and to add a convection-diffusion equation for the species molar fractions composing the mixture [107–109]. However, this model is inaccurate when two or more gas species are not dilute, since the overall density is impacted by the composition of the mixture [129, 138]. In this case, the hydrodynamic equations should account for the evolution of the species molar fractions.

Early work on multicomponent flow developed an interaction potential which is tuned for both immiscible and miscible flows [160]. The model recovers mixture transport coefficients [161, 162], but lacks some theoretical analysis to rigorously derive the potential from the kinetic theory [126]. Also, as the BGK-type collision operator directly relates viscosity to diffusivity through the same relaxation time, simulations can only be performed at a fixed momentum to mass diffusion ratio [124, 163], i.e. at a constant Schmidt number.

A multifluid approach based on Sirovich’s kinetic theory of gas mixtures [123] has been investigated. It introduces as many distribution functions as the number of species in the gas mixture, and the collision operator is split into self-collisions and cross-collisions dynamics [163]. While self-collisions relate to species viscosity at the macroscopic scale, the coupling within the mixture lies in cross-collisions, where individual species fluid particles exchange momentum with one another and relates to the binary diffusion coefficient. The independent relaxation between fluid viscosity and diffusivity allows simulation at arbitrary Schmidt numbers. The model has been extended to species with different molecular masses [164] and generalized to multicomponent flows [112], but does not satisfy the indifferenciability principle [126]. In other words, it does not reduce to the standard single component LBM algorithm if the species are identical: even though each equilibrium term in the split collision operator is defined by a Maxwellian distribution, the summation does not generally hold true.

A more general expression of Sirovich’s kinetic theory investigated by Hamel [125] has been implemented within the LBM [126, 165]. A modified characteristic mixture velocity satisfies the indifferenciability principle. The resulting model for binary mixtures smoothly transitions from the two-fluid behavior with non-interacting species to a single fluid definition where

species velocities are equal to the mixture velocity and ensures homogeneous properties for the mixture. The model exhibits a second-order accuracy in space and time at asymptotic flow regimes (pure diffusion and viscous dominant) through a multi-scale analysis. The coupling between the species occurs through the viscous term instead of a forcing term for the diffusion force to remove the LBM stability constraints.

By gathering both gas mixture diffusivity and viscosity under a multi-relaxation time (MRT) collision operator following the development of Andries *et al.* [127], a single fluid modeling becomes consistent with the limit expressions of binary mixtures in the hydrodynamic regime [128, 129, 137]. The scheme exhibits an increased stability range, and transport mechanisms are decoupled as they relax independently in the moment space. The barycentric velocity defines the equilibrium velocity, and the momentum exchange ruled by the Maxwell-Stefan equations satisfy the indifferentiability principle [128]. This model has also been adapted to rarefied multicomponent gas flows [130] to observe the gas phase separation phenomenon [7, 131].

A recent multifluid approach for binary gas mixtures has been investigated by Vienne *et al.* [138]. Theoretically based on an alternative Chapman-Enskog expansion proposed by Kerkhof and Geboers [132], each species follows the single component LBM algorithm with the local equilibrium velocity defined as the species velocity rather than the mixture one [129]. A interspecies friction force discretized in the LBM as a source term couples the species and relates to the generalized Stefan-Maxwell diffusion equations.

An additional LBM model consists in solving a entropy-minimization problem under conservation constraints to compute the fluid local equilibrium state [166–168]. Thermal [169, 170] and reactive [153] multicomponent flows have been simulated, but the analysis of this model remains outside the scope of the current study. It will thus not take part in our numerical comparison.

In the sequel, the single fluid LBM approach with the MRT operator will be referred as the “binary mixture” model (BMM) [129], and the multifluid approach based on the theory of Kerkhof *et al.* [10] will be referred as the “individual species” model (ISM) [138]. A numerical comparison and verification of these models aims at pointing out their similarities and differences to facilitate the choice of a proper model for a given application.

Miscible flows are reduced to binary mixtures in the present study for simplicity, but the results generalize to multicomponent flows with an arbitrary number of species. A pure mixture diffusion and a binary plane Poiseuille flow in 2D are simulated. Isothermal and incompressible flow is assumed. Pure diffusion has been commonly used as a test case, but the binary plane Poiseuille flow has not been numerically investigated with the LBM to

the authors' knowledge. The authors believe that the results of the current study could be used as a baseline for model verification in further LBM development for multicomponent purposes and provide at the same time a better understanding of the theoretical differences between the two models. This current work is a preliminary analysis for a model extending multicomponent flows to the rarefied regime.

The rest of the article is organized as follows. Section 4.3 describes the two models. Section 4.4 presents the two test cases with an extensive study of the multicomponent Poiseuille flow based on viscosity ratio, molecular mass ratio, and Schmidt number. The numerical results are compared with the analytical ones and discussed in Section 4.5. Section 4.6 summarizes the differences between the two LBM models from the numerical simulations.

4.3 Description of the LBM models

In this section, we introduce the two multicomponent LBM models. The standard single component LBM is first described to have a comprehensible look at the numerical model. Then, we explain the modifications to include the gas mixtures additional physical processes.

4.3.1 Single component LBM

The standard single component LBM solves a discrete form of the Boltzmann equation, called the lattice Boltzmann equation [138]:

$$f_i(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta t, t + \delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) + \delta t \Omega(f_i(\mathbf{x}, t)) + \delta t S_i(\mathbf{x}, t), \quad (4.1)$$

where δt is the time step and S_i is the source term defining the contribution of an external force \mathbf{F} in its discretized form [171].

The discrete fluid particle distribution functions f_i are the unknown variables in the LBM. A finite number of kinetic velocities $\boldsymbol{\xi}_i$ defines the way they evolve in time and space. The discretized space is a fixed cartesian grid, whose elements are called lattices. The discretization schemes in LBM must satisfy the Gauss-Hermite quadrature rule while discretizing the continuous domain and have enough discrete velocities to ensure an accurate description of the fluid [157]. For 2D simulations, we limit ourselves to 9 discrete velocities, which results in the D2Q9 stencil as depicted in Fig. 4.1. In the figure, the lattice speed c is defined by $c = \delta x / \delta t$ with δx being the discrete spatial step.

LBM simulations are usually performed in a lattice unit (l.u.) system where $\delta x = \delta t = 1$ so that the lattice speed is also unitary [77]. It will also be the case for the simulations in

this work. Each discrete velocity vector is also assigned a coefficient ω_i weighing the local probability of each distribution function, so that $\sum_i \omega_i = 1$.

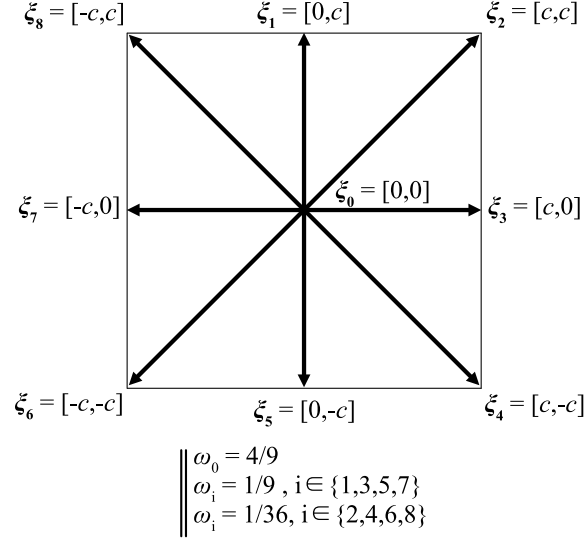


Figure 4.1 D2Q9 discretization scheme

The discrete form of the collision operator in the Boltzmann equation is designated by the term $\Omega(f_i(\mathbf{x}, t))$ and gives the rules of particle-particle collisions and momentum exchange. The BGK collision term is a common approximation [79]:

$$\Omega(f_i(\mathbf{x}, t)) = -\frac{1}{\tau} \left(f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{(\text{eq})}(\mathbf{x}, t) \right). \quad (4.2)$$

Equation (4.2) states that fluid particles will locally evolve towards an equilibrium state $f_i^{(\text{eq})}$ following a given relaxation rate $\frac{1}{\tau}$ with τ being the fluid-viscosity related relaxation time. A Maxwellian distribution defines the local equilibrium distribution [77, 157]:

$$f_i^{(\text{eq})}(\mathbf{x}, t) = \omega_i \rho \left[1 + \frac{\xi_i \cdot \mathbf{u}}{c_s^2} + \frac{(\xi_i \cdot \mathbf{u})^2}{2c_s^4} - \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}}{2c_s^2} \right], \quad (4.3)$$

where ρ and \mathbf{u} are respectively the density and the velocity vector at the local fluid node. From the lattice speed c we can also compute the LBM speed of sound, set for the D2Q9 stencil to $c_s = c/\sqrt{3}$ [77]. It is also used to obtain the gas pressure p through the equation of state for an isothermal gas. Thus, we also have $c_s = \sqrt{RT}$, so that $p = \rho c_s^2$ [77].

Through a Chapman-Enskog expansion, the LBM recovers the hydrodynamic equations as well as the relevant macroscopic transport coefficients [156]. The mathematical expansion

gives:

$$\tau = \frac{1}{2} + \frac{\mu}{\rho c_s^2 \delta t} , \quad (4.4)$$

which simplifies for the D2Q9-LBM in the lattice unit system to:

$$\tau = 0.5 + 3\frac{\mu}{\rho} = 0.5 + 3\nu , \quad (4.5)$$

with μ and ν the fluid dynamic and kinematic viscosities, respectively, and the following macroscopic equations are recovered:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 , \quad (4.6)$$

$$\frac{\partial (\rho \mathbf{u})}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla (\rho \mathbf{u}) = -\nabla p + \nabla \cdot (\nu \nabla (\rho \mathbf{u})) + \mathbf{F} . \quad (4.7)$$

When strong density gradients appear, such as for multiphase flows, a specific treatment of the LBM manages the additional terms in the stress tensor [172,173]. In the following simulations, the density gradient is imposed to stay within the incompressible limit hypothesis, so that the LBM model solves the standard Navier-Stokes equations [156,157]:

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 , \quad (4.8)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \mu \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{F} . \quad (4.9)$$

The different order moments of the distribution functions computes the relevant macroscopic quantities [77]:

$$\rho = \sum_i f_i , \quad (4.10)$$

$$\rho \mathbf{u} = \sum_i \boldsymbol{\xi}_i f_i + \frac{\delta t}{2} \mathbf{F}_i . \quad (4.11)$$

The multicomponent models follow the same steps as described above for the single component model with modifications within each step. As they both use a distinct distribution function for each species of the mixture, the rest of the paper will replace the different variables with an exponent $k \in [\sigma, \zeta]$ for the k -th species of the binary mixture, whereas the variables without exponent will relate to the mixture.

4.3.2 The binary mixture model (BMM)

The binary mixture model (BMM) developed by Asinari *et al.* [129] builds upon the theoretical development of the Boltzmann equation by Andries *et al.* [127], also called the ‘‘AAP-model’’. Despite the algorithm being developed to model the mixture flow, there are as many distribution functions as species in the mixture. For a binary mixture of components σ and ζ , the resulting equations solved by the BMM are:

$$f_i^\sigma(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta t, t + \delta t) = f_i^\sigma(\mathbf{x}, t) + \delta t \Omega(f_i^\sigma(\mathbf{x}, t)) + \delta t S_i^\sigma(\mathbf{x}, t), \quad (4.12)$$

$$f_i^\zeta(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta t, t + \delta t) = f_i^\zeta(\mathbf{x}, t) + \delta t \Omega(f_i^\zeta(\mathbf{x}, t)) + \delta t S_i^\zeta(\mathbf{x}, t). \quad (4.13)$$

As no body force is introduced, the LB equations for the BMM have no source term ($S_i^\sigma = S_i^\zeta = 0$). The collision operator is modified to simultaneously treat self-collisions and interspecies collisions within the gas mixture by using a multi-relaxation time (MRT) expression [129]:

$$\Omega(f_i^k(\mathbf{x}, t)) = -\mathbf{M}^{-1} \mathbf{S}^k \mathbf{M} \left(f_i^k(\mathbf{x}, t) - f_i^{k,(\text{eq})}(\mathbf{x}, t) \right), \quad k \in [\sigma, \zeta], \quad (4.14)$$

where \mathbf{M} and \mathbf{M}^{-1} respectively relate to the transformation matrix and its inverse counterpart in the moment space. The matrix coefficients for the common discretization LBM schemes can be found in the literature [77, 157]. The relaxation matrix \mathbf{S}^k contains as many relaxation rates as discrete velocities in a diagonal form. Thus, the D2Q9 MRT relaxation matrix writes as $\mathbf{S}^k = \text{diag}(\tau_i^k)^{-1}$, $i = 0..8$. Each relaxation rate of the matrix relates to a single moment, some of which have a physical meaning. The relaxation rate τ_i^k relates to the mixture kinematic viscosity ν for $i = 7$ and $i = 8$, and the binary diffusion coefficient $D^{\sigma\zeta}$ for $i = 3$ and $i = 5$, so that $\tau_7^k = \tau_8^k = \tau_\nu^k$ and $\tau_3^k = \tau_5^k = \tau_D^k$. While τ_ν^k follows Eq. (4.5) with the mixture kinematic viscosity, τ_D^k is defined as [130]:

$$\tau_D^k = 0.5 + \frac{D^{\sigma\zeta} m^\sigma m^\zeta n^2}{p\rho}, \quad (4.15)$$

where m^σ and m^ζ are the species molecular weights. n , ρ and p respectively define the mixture number density, the mixture density and the total pressure. The mixture quantities

are related to the individual species ones with the following expressions:

$$n = n^\sigma + n^\zeta , \quad (4.16)$$

$$\rho = \rho^\sigma + \rho^\zeta , \quad (4.17)$$

$$p = p^\sigma + p^\zeta . \quad (4.18)$$

We introduce the k -th species molar fraction χ^k to write the individual species quantities as a function of the mixture ones:

$$\chi^k = \frac{n^k}{n} , \quad \sum_k \chi^k = 1 , \quad (4.19)$$

$$p^k = \chi^k p , \quad (4.20)$$

$$\rho^k = \chi^k m^k \rho . \quad (4.21)$$

Equations (4.19)-(4.21) are written under the assumption of a simple mixing rule for mixture flows given by Dalton's law.

The other relaxation times, are freely tuned from the literature [90, 93] as they have little impact on the overall fluid behaviour.

The collision operator with Eq. (4.2) and Eq. (4.5) only requires a mixture kinematic viscosity, and the binary diffusion coefficient is symmetrical, (i.e. $D^{\sigma\zeta} = D^{\zeta\sigma}$). Therefore, we can write $\mathbf{S}^\sigma = \mathbf{S}^\zeta = \mathbf{S}$.

Mixture quantities are used for species equilibrium calculation to take into account both types of collision. Such an equilibrium is derived under the assumption that species velocities are centered around the mixture velocity as a first order approximation [132]. Thus, we define the mixture velocity as [129]:

$$\mathbf{u} = \frac{\rho^\sigma \mathbf{u}^\sigma + \rho^\zeta \mathbf{u}^\zeta}{\rho^\sigma + \rho^\zeta} , \quad (4.22)$$

which is then used to define the species equilibrium distribution function $f_i^{k,(\text{eq})}$:

$$f_i^{k,(\text{eq})}(\mathbf{x}, t) = \omega_i \rho \left[\alpha_i^k + \frac{\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{u}}{c_s^2} + \frac{(\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{u})^2}{2c_s^4} - \frac{\mathbf{u} \cdot \mathbf{u}}{2c_s^2} \right] . \quad (4.23)$$

Equation (4.23) deviates from Eq. (4.3) by an additional coefficient α_i^k which accounts for

species with different molecular weights. With the D2Q9 stencil, the values for α_i^k are [130]:

$$\alpha_i^k = \begin{cases} \frac{9}{4} - \frac{5}{4}s^k & , i = 0 \\ s^k & , i \neq 0 \end{cases} , \quad (4.24)$$

where s^k is given by the following ratio:

$$s^k = \frac{\min(m^\sigma, m^\zeta)}{m^k}. \quad (4.25)$$

By analogy with the standard equation of state in LBM, the species partial pressure p^k is related to the total density ρ as:

$$p^k = \rho^k (c_s^k)^2 = \chi^k s^k \rho c_s^2 , \quad (4.26)$$

where $c_s^k = c_s \sqrt{s^k}$ is the species speed of sound and c_s is defined as in Sec. 4.3.1.

To retrieve the different macroscopic quantities, the expressions follow Eqs. (4.10)-(4.11) for the mixture with $\mathbf{F}_i = \mathbf{0}$. The individual species density follows Eq. (4.5), but a modified equation is introduced to recover the species momentum [130]:

$$\rho^k \mathbf{u}^k = \left(1 - \frac{1}{2\tau_D}\right) \sum_i \xi_i f_i^k + \frac{\rho^k \mathbf{u}}{2\tau_D}. \quad (4.27)$$

The non-conservation of momentum species explains the form of Eq. (4.27) as there is momentum exchange between the species; however, mixture momentum conservation still holds true through Eq. (4.11).

Asinari's model performs numerical simulations from the diffusion limit to the hydrodynamic (pressure-driven) limit model [129, 174]. Similar to the standard LBM, the species hydrodynamic equations for incompressible flows are obtained through a Chapman-Enskog expansion [129]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho^k + \nabla \cdot (\rho^k \mathbf{u}^k) = 0 , \quad (4.28)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho^k \mathbf{u}^k) + \mathbf{u} \cdot \nabla (\rho^k \mathbf{u}) = -\nabla p^k + \nabla \cdot (\nu \nabla (\rho^k \mathbf{u}^k)) - \frac{1}{\tau_D} [\rho^k (\mathbf{u}^k - \mathbf{u})]. \quad (4.29)$$

Equations (4.28)-(4.29) recover the classical hydrodynamic equations (Eqs. (4.8)-(4.9)) for the mixture by summing them over the species.

4.3.3 The individual species model (ISM)

The individual species model (ISM) also follows Eqs. (4.12)-(4.13) but an alternative derivation of the Boltzmann equation is used to recover the macroscopic equations [10]. Here, the equilibrium distribution function revolves around the species velocity rather than the mixture velocity given by Eq. (4.22). Therefore, $f_i^{k,(eq)}$ follows Eq. (4.3) with the species velocity \mathbf{u}^k instead of \mathbf{u} .

At the macroscopic scale, species mass and momentum conservation follow Eqs. (4.8)-(4.9) with species quantities ($\rho^k, \mathbf{u}^k, p^k$ and μ^k). An external force \mathbf{F}_D^k accounts for the interspecies interactions and writes for isothermal flows as [138]:

$$\mathbf{F}_D^k = -p \sum_{l \neq k} \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l). \quad (4.30)$$

Considering binary mixtures simplifies Eq. (4.30):

$$\mathbf{F}_D^\sigma = -p \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{D^{\sigma\zeta}} (\mathbf{u}^\sigma - \mathbf{u}^\zeta) = -\mathbf{F}_D^\zeta. \quad (4.31)$$

The governing hydrodynamic equations write as:

$$\frac{\partial \rho^k}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho^k \mathbf{u}^k) = 0, \quad (4.32)$$

$$\rho^k \left(\frac{\partial \mathbf{u}^k}{\partial t} + \mathbf{u}^k \cdot \nabla \mathbf{u}^k \right) = -\nabla p^k + \mu^k \nabla^2 \mathbf{u}^k + \mathbf{F}_D^k. \quad (4.33)$$

For steady state flows with negligible convective effects, Eqs. (4.32)-(4.33) reduce to the Stefan-Maxwell equations describing pure diffusion in multicomponent flows [132].

Apart from the definition of $f_i^{k,(eq)}$, the collision term follows Eqs. (4.2)-(4.5), with τ related to the species kinematic viscosity ν^k . Each species distribution function thus relies on a distinct collision operator.

A body force is introduced to account for different lattice speeds because of different molecular masses rather than modifying $f_i^{k,(eq)}$ by means of Eqs. (4.23)-(4.24). The resulting body force \mathbf{F}_B^k is [138]:

$$\mathbf{F}_B^k(\mathbf{x}) = (1 - s^k) c_s^2 \nabla \rho^k(\mathbf{x}), \quad (4.34)$$

$$\nabla \rho^k(\mathbf{x}) = \frac{1}{c_s^2} \sum_i \omega_i \xi_i \rho^k(\mathbf{x} + \xi_i), \quad (4.35)$$

with s^k defined in Eq. (4.25), and the species and mixture equations of state (Eq. (4.26)) are recovered. The species density gradient $\nabla\rho^k$ follows a S2I4 scheme (second order in space, fourth order in isotropy) [175, 176]. The resulting total body force $\mathbf{F}^k = \mathbf{F}_B^k + \mathbf{F}_D^k$ thus replaces \mathbf{F}_D^k in Eq. (4.33).

The total body force $\mathbf{F}^k = \mathbf{F}_B^k + \mathbf{F}_D^k$ is integrated in the LBM with the following forcing scheme [171]:

$$S_i^k = \left(1 - \frac{\delta t}{2\tau}\right) \omega_i \left[\frac{\boldsymbol{\xi}_i - \mathbf{u}^k}{c_s^2} + \frac{(\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{u}^k) \boldsymbol{\xi}_i}{c_s^4} \right] \cdot \mathbf{F}^k. \quad (4.36)$$

Finally, species macroscopic quantities are obtained by applying Eqs. (4.10)-(4.11) with the species variables. The common mixing rule computes the mixture quantities. However, the calculation of species velocity is not straightforward because of the dependence of \mathbf{F}_D^k on \mathbf{u}^k . A linear system is locally solved at each fluid node, which is written for a binary mixture as:

$$\begin{bmatrix} \rho^\sigma + p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} & -p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} \\ -p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} & \rho^\zeta + p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{u}^\sigma \\ \mathbf{u}^\zeta \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sum \boldsymbol{\xi}_i f_i^\sigma + \frac{\delta t}{2} \mathbf{F}_B^\sigma \\ \sum \boldsymbol{\xi}_i f_i^\zeta + \frac{\delta t}{2} \mathbf{F}_B^\zeta \end{bmatrix}. \quad (4.37)$$

The quantities in the linear system are not coupled along the different axis. For instance, the linear system along the x -axis writes:

$$\begin{bmatrix} \rho^\sigma + p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} & -p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} \\ -p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} & \rho^\zeta + p\delta t \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{2D^{\sigma\zeta}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} u_x^\sigma \\ u_x^\zeta \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sum (\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{e}_x) f_i^\sigma + \frac{\delta t}{2} F_{x,B}^\sigma \\ \sum (\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{e}_x) f_i^\zeta + \frac{\delta t}{2} F_{x,B}^\zeta \end{bmatrix}. \quad (4.38)$$

The solution at each node is directly solved for binary mixtures. For more species, the Cholesky decomposition method is suggested [175].

Some details must be given for the calculation of species dynamic viscosities. Indeed, a species pure dynamic viscosity, which is the value when the species is alone, is different to its partial value when mixed with other species. Following the kinetic theory of gases [140], Wilke's law computes the partial and mixture dynamic viscosities [10, 138]:

$$\begin{aligned} \mu^k &= \frac{\chi^k \mu_0^k}{\sum_l \chi^l \phi_{kl}}, \\ \text{with } \phi_{kl} &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(1 + \frac{m^k}{m^l}\right)^{-\frac{1}{2}} \left[1 + \sqrt{\frac{\mu_0^k}{\mu_0^l}} \left(\frac{m^l}{m^k}\right)^{\frac{1}{4}}\right], \end{aligned} \quad (4.39)$$

where μ_0^k is the pure viscosity of the k -th species. The mixture dynamic viscosity is obtained with $\mu = \sum_k \mu^k$.

Consequently, the species and mixture partial kinematic viscosities write as:

$$\begin{aligned} \nu^k &= \mu^k / \rho^k , \\ \nu &= \mu / \rho = \sum_k \mu^k / \sum_k \rho^k . \end{aligned} \tag{4.40}$$

In practice, we impose the pure viscosities, compute the partial viscosities with Eq. (4.39) and retrieve the kinematic viscosities with Eq. (4.40). The relaxation matrix depend on ν^k for the ISM and ν for the BMM.

The BMM integrates both viscosity and diffusion into the collision operator to relax them independently. The ISM decouples viscous and diffusive transport of a gas mixture with a species viscosity-only based collision term and an external force to account for diffusive effects. The two models also solve different macroscopic equations. They may thus lead to different flow behavior, which we will point at in the next sections.

4.4 Numerical results

Numerical results from the BMM and the ISM are compared through two test cases. The first case is the pure diffusion of a binary mixture, while the second focuses on a binary Poiseuille flow in a 2D rectangular channel. All simulations are performed in the lattice unit system described in Sec. 4.3. These test cases are suitable for model verification as they both provide analytical solutions. An extensive study on the influence of simulation parameters is performed to highlight the differences between the models.

4.4.1 Pure diffusion

An isobaric binary mixture follows individual species mass transfer dynamics caused by concentration gradients. The governing equations for each species write [138]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho^k = D^{\sigma\zeta} \nabla^2 \rho^k , \quad k \in [\sigma, \zeta]. \tag{4.41}$$

Through this test case, we assess the ability for both models to simulate pure diffusion processes despite the development of a viscous-based model, and to accurately capture the dynamics of a species with different molecular masses on a single cartesian grid.

The computational domain is a 2D rectangular domain discretized by $n_x \times n_y = 200 \times 5$

lattices. A sinusoidal function initializes the first species:

$$\rho^\sigma(x) = \rho_0^\sigma - \delta_\rho^\sigma \sin\left(\frac{2\pi x}{n_x}\right), \quad (4.42)$$

with an initial density $\rho^\sigma = 1$ and a small density perturbation amplitude $\delta_\rho^\sigma = 0.01$. The second species is initialized accordingly to ensure a constant pressure in the computational domain with Eq. (4.26).

A particular solution is given for the temporal evolution of the density profiles:

$$\rho^k(x, t) = \rho_0^k + (-1)^k \delta_\rho^k \exp\left(\frac{-4\pi^2 D^{\sigma\zeta} t}{n_x^2}\right) \sin\left(\frac{2\pi x}{n_x}\right). \quad (4.43)$$

The molecular mass ratio is set to 10. In practice, $m^\zeta = 10$ and $m^\sigma = 1$ in the LBM so that σ is the reference species. Species and mixture kinematic viscosities are set to $1/6$, so that the viscosity-related relaxation time defined in Eq. (4.5) is equal to unity. The binary diffusion coefficient is set to $D^{\sigma\zeta} = 0.01$. Periodic boundary conditions are imposed at all domain limits.

Figure 4.2 shows the temporal evolution for the second and heavier species. No visible deviation is observed with the analytical solution and shows the accuracy of both models.

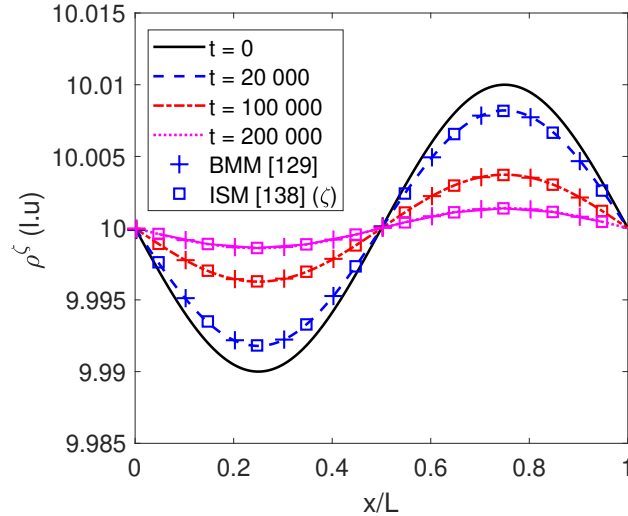


Figure 4.2 Temporal evolution of the second species density. Solid (-), dashed (--), dash-dotted (-.) and dotted (....) lines exhibit Eq. (4.43) for ζ at different time steps. Numerical results are displayed with markers (+) and (\square). Lines and markers at the same time step are identified by the same color. Density values are given in lattice units (l.u.).

In Fig. 4.3, a mesh refinement study is also performed with both models by computing the L^2 -norm relative error for the second species density:

$$\mathcal{E}_2^\zeta = \frac{\|\rho^\zeta - \rho_{\text{ref}}^\zeta\|_2}{\|\rho_{\text{ref}}^\zeta\|_2}, \quad (4.44)$$

where ρ_{ref}^ζ is the analytical solution given by Eq. (4.43).

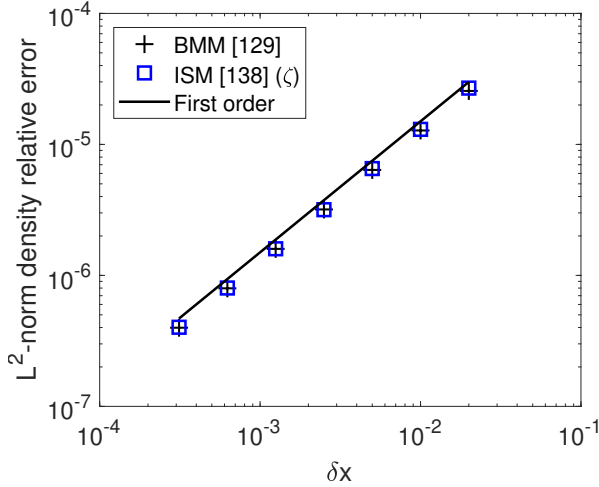


Figure 4.3 L^2 -norm density relative error calculation as a function of the spatial step δx . Numerical results are displayed with markers (+) and (\square). The solid line (-) displays the expected behavior for a first order of convergence. Equation (4.43) gives the reference density profile for the relative error calculation.

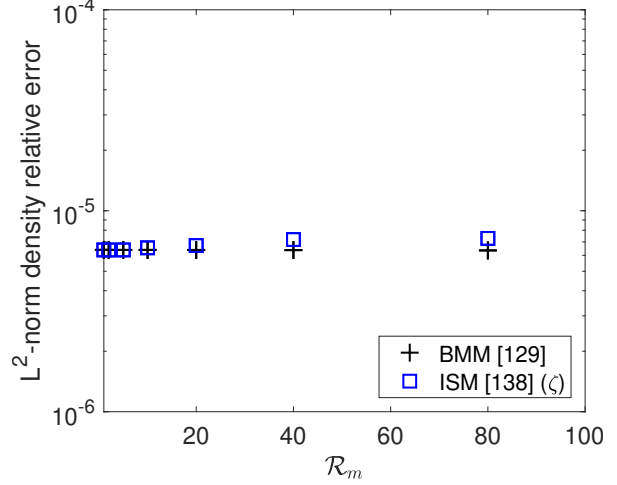


Figure 4.4 L^2 -norm density relative error calculation as a function of the molecular mass ratio \mathcal{R}_m . Equation (4.43) gives the reference density profile for the relative error calculation.

The relative error is calculated after 20 000 time steps for a 200×5 discretization. The time steps for the other discretizations are deduced from a diffusive scaling [157] to compute the error at the same physical time. The results displayed in logarithmic scale in Fig. 4.3 show a first-order convergence rate for density for both models in the case of pure diffusion. The existence of such a convergence rate highlights the compatibility of the two viscous-based LBM models to perform pure diffusion simulations in multicomponent flows.

Finally, the influence of the molecular mass ratio \mathcal{R}_m on the accuracy of the models is investigated. The relative error for density is calculated for a 200×5 domain using Eq. (4.44) for $\mathcal{R}_m \in [1, 80]$ and compared with the analytical solution at 20 000 time steps. The molecular mass ratio has a negligible impact on the accuracy of the BMM (Fig. 4.4). The relative error

slightly increases with \mathcal{R}_m for the ISM and highlights a greater sensitivity of the model to large molecular mass ratios. However, the error still remains of little magnitude even at large \mathcal{R}_m .

The numerical comparison for a pure diffusion test case shows that they both capture diffusion processes in binary mixtures with different molecular masses species. Both models exhibit a first-order convergence rate for density with the same order of accuracy, even though the ISM slightly loses in accuracy when the molecular mass ratio becomes significant.

4.4.2 Binary plane Poiseuille flow

The second test case compares the two LBM models throughout a 2D plane Poiseuille flow of a binary mixture. The simulation domain is of length L and the solid walls are located respectively at $y = -H$ and $y = H$. Analytical solutions from their respective macroscopic equations are detailed. A convergence analysis is performed, and the influence of mixture parameters and driving mechanism coefficients on flow behavior and model accuracy is studied.

Analytical solutions

The BMM assumes a homogeneous mixture behaving as one single component whose dynamic viscosity is a combination of the species ones, and Eq. (4.29) describes the evolution of the mixture velocity. This assumption holds true as long as convection dominates diffusion as a driving mechanism for mixture flows [174]. Thus, the diffusion-induced velocity is of little magnitude compared to the pressure-driven velocity and the individual species flow in a similar fashion to the mixture, validating at the same time the homogeneous property.

Consequently, the analytical axial velocity u_a^{BMM} for the BMM is obtained only for the mixture and follows the standard parabolic profile :

$$u_a^{\text{BMM}}(y^*) = \frac{H^2}{2\mu} \frac{dp}{dx} (1 - y^{*2}) , \quad (4.45)$$

where μ is the mixture dynamic viscosity and $y^* = y/H \in [-1, 1]$ is the normalized height.

The derivation focuses on the species velocities with the ISM to recover the mixture velocity. Because the theoretical development does not assume the species velocities to be close to the mixture one, the solution is valid regardless of the driving mechanism.

For a binary plane Poiseuille flow with the standard hydrodynamic assumptions, the govern-

ing equations reduce to:

$$\begin{cases} -\frac{dp^\sigma}{dx} + \mu^\sigma \left(\frac{\partial^2 u^\sigma}{\partial y^2} \right) + p \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{D^{\sigma\zeta}} (u^\zeta - u^\sigma) = 0, \\ -\frac{dp^\zeta}{dx} + \mu^\zeta \left(\frac{\partial^2 u^\zeta}{\partial y^2} \right) + p \frac{\chi^\sigma \chi^\zeta}{D^{\sigma\zeta}} (u^\sigma - u^\zeta) = 0, \end{cases} \quad (4.46)$$

where μ^σ and μ^ζ are the species partial dynamic viscosities.

The interspecies friction force related to $D^{\sigma\zeta}$ couples the individual species velocities in Eq. (4.46). Details of the resolution are given in the analytical derivation of Kerkhof *et al.* [10] by considering a slip boundary condition at solid walls. Here, we rewrite the axial velocity profiles for both species $u^{\text{ISM},\sigma}$ and $u^{\text{ISM},\zeta}$ without slippage [175]:

$$\begin{aligned} u_a^{\text{ISM},\sigma}(y^*) &= -\frac{H^2}{2\mu} \frac{dp}{dx} \left[(1 - y^{*2}) \right. \\ &\quad \left. - \left(\chi^\sigma \left(1 + \frac{\mu^\zeta}{\mu^\sigma} \right) - 1 \right) \frac{4}{\lambda^2} \frac{\sinh(\lambda)}{\sinh(2\lambda)} (\cosh(\lambda y^*) - \cosh(\lambda)) \right], \end{aligned} \quad (4.47)$$

$$\begin{aligned} u_a^{\text{ISM},\zeta}(y^*) &= -\frac{H^2}{2\mu} \frac{dp}{dx} \left[(1 - y^{*2}) \right. \\ &\quad \left. - \left(\chi^\zeta \left(1 + \frac{\mu^\sigma}{\mu^\zeta} \right) - 1 \right) \frac{4}{\lambda^2} \frac{\sinh(\lambda)}{\sinh(2\lambda)} (\cosh(\lambda y^*) - \cosh(\lambda)) \right], \end{aligned} \quad (4.48)$$

where λ is defined by:

$$\lambda = \frac{D^{\sigma\zeta} \mu^\sigma \mu^\zeta}{p \chi^\sigma \chi^\zeta \mu H}. \quad (4.49)$$

From Eqs. (4.47)-(4.48), we can identify two distinct parts composing the species velocity. The first term is the viscous contribution similar to the classical single component profile. The second term defines the diffusive contribution caused by interspecies molecular collisions.

We may question the validity of the multifluid approach introduced by the ISM, as the resulting velocity profiles seem unusual for a simple Poiseuille flow. Indeed, Kerkhof *et al.* [10] has validated the model with a counter-diffusion experiment of He-N₂ performed by Remick *et al.* [133], but there has been no comparative work for convection-diffusion flows to our knowledge. Nevertheless, we may still point out that if we combine Eqs. (4.47)-(4.48) with Eq. (4.22), it approaches Eq. (4.45) obtained from the BMM macroscopic equations in the fully convective limit. Within this regime, both models would give comparable results.

4.4.3 Preliminary analysis

Unlike the pure diffusion case (see Sec. 4.4.1), the competing convection and diffusion transport mechanisms for a binary mixture flow must be carefully considered. Convection trans-

port defines the displacement of the bulk flow in the presence of an external force or a pressure gradient. When convection transport is dominant, all species move with the same velocity with a magnitude related to the driving force one. Diffusion transport exists in flows with more than one species. The displacement of a species through diffusion occurs with concentration gradients, and moves from high to low concentration areas with respect to the Maxwell Stefan equations [10]. Therefore, a non-zero species velocity may exist in a domain even with constant pressure and no external force.

As two types of transport coexist in the binary plane Poiseuille flow, we assess their relative magnitude with the mixture Schmidt number Sc :

$$Sc = \frac{\mu}{\rho D^{\sigma\zeta}} = \frac{\nu}{D^{\sigma\zeta}}, \quad (4.50)$$

where the mixture kinematic viscosity ν is obtained with Eq. (4.40).

A high Schmidt number is characteristic of a high mixture viscosity compared to the binary diffusion coefficient. Thus, the mixture is mainly defined by its viscosity, and diffusion transport is negligible. Diffusion transport has a significant impact on the overall transport of the individual species with a low Schmidt number. From Eq. (4.50), we may identify two flow regimes: a “viscous dominant” one at high Sc , and a “diffusion dominant” one at low Sc .

We first look at the numerical results for a single component flow. Therefore, two species are initialized in the 2D domain, but they are of identical nature and are distinctly identified with σ and ζ . The mixture is equimolar, $\chi^\sigma = \chi^\zeta = 0.5$, the molecular mass is set to unity for both species, and their pure viscosity is equal to $1/6$. A fullway bounce-back boundary condition mimics the presence of solid walls [157]. A pressure gradient drives the flow between the parallel plates. The density extrapolation boundary condition is implemented for the BMM [7, 130, 131] whereas the partial density of each species is imposed in the ISM with a regularized pressure boundary condition [177] to obtain the pressure gradient.

All analytical profiles (Eqs. (4.45),(4.47)-(4.48)) are consistent with the single component parabolic profile with $Sc = 1$. Simulations are performed with different refinement of the spatial step δx , and the L^2 -norm relative error for velocity is plotted for both models in Fig. 4.5 with help of Eq. (4.44). Both models follow a second-order convergence order for velocity in the physical units, which is the same behavior as with a single component flow with fullway (or halfway) bounce-back treatment for solid walls [157]. These results satisfy the indifferentiability principle and the compatibility of both LBM models for multicomponent flow simulation. The following subsections separately investigate the “viscous dominant” and

the “diffusion dominant” regimes according to the Schmidt number as a first approximation. However, we will see in Sec. 4.5 that within this test case, the Schmidt number itself is not sufficient to describe the flow regime.

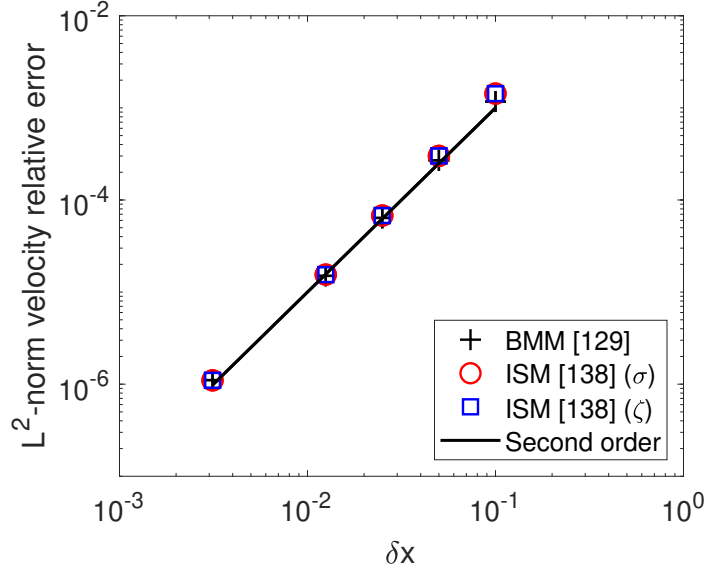


Figure 4.5 L^2 -norm velocity relative error calculation as a function of the spatial step δx at $Sc = 1$. The solid line (-) displays the expected behavior for a second order of convergence. Numerical results are displayed with markers. Equations (4.45), (4.47) and (4.48) are the respective reference velocities for the relative error calculation for (+), (o) and (□).

4.4.4 Mixture flow simulation in viscous diffusive competing regimes

In the next simulations, we introduce species with distinct properties to perform actual mixture flows. As long as the numerical models accurately solve their respective macroscopic equations, different numerical results are expected. The following simulations aim at pointing out the flow conditions where the models deviate from each other. Because of the competing driving mechanisms in pressure-driven mixture flows, the numerical results are discussed for both viscous and diffusive dominant regimes.

Viscous dominant flow regime

When the fluid viscosity is the dominant mechanism for a Poiseuille flow, the mixture nearly behaves as a single component flow. In other words, the individual species velocities are almost equal and similar to the mixture velocity [127, 174]. This is expected before any simulation, as Eqs. (4.47)-(4.48) exhibit a second term in cosh which approaches 0 at a low

binary diffusion coefficient and thus at a high Schmidt number. The accuracy of the LBM models is investigated within this regime depending on the molecular mass ratio \mathcal{R}_m and the pure viscosity ratio \mathcal{R}_μ :

$$\begin{aligned}\mathcal{R}_m &= \frac{m^\zeta}{m^\sigma} \\ \mathcal{R}_\mu &= \frac{\mu^\zeta}{\mu^\sigma}\end{aligned}\tag{4.51}$$

Simulations are performed at $Sc = 10$ with $\mathcal{R}_m \in [1, 10]$ and $\mathcal{R}_\mu \in [0.1, 10]$. The binary diffusion coefficient $D^{\sigma\zeta}$ is set with respect to Sc and Eq. (4.50). Stability issues occurred for both models at low \mathcal{R}_m , because the low resulting mixture kinematic viscosity and even lower binary diffusion coefficient affected the collision process [157]. The Schmidt number was lowered to stay within the stability range for the BMM. However, this variation did not alter the analytical profiles for the mixture nor the individual species. The unchanged velocity profiles despite the Schmidt decrease denotes that the simulations still occur in the viscous dominant regime. Numerical stability could not be achieved by only decreasing the Schmidt number for the ISM. Indeed, for low \mathcal{R}_μ , the resulting species kinematic viscosities computed with Wilke's law are very low (under 10^{-2}) in the LBM algorithm, which is not very suitable for a BGK collision operator [157]. An MRT collision operator is thus implemented for each species to simulate binary mixtures at low kinematic viscosities and high Schmidt numbers:

$$\begin{aligned}\Omega(f_i^\sigma(\mathbf{x}, t)) &= -\mathbf{M}^{-1}\mathbf{S}^\sigma\mathbf{M}\left(f_i^\sigma(\mathbf{x}, t) - f_i^{\sigma,(\text{eq})}(\mathbf{x}, t)\right), \\ \Omega(f_i^\zeta(\mathbf{x}, t)) &= -\mathbf{M}^{-1}\mathbf{S}^\zeta\mathbf{M}\left(f_i^\zeta(\mathbf{x}, t) - f_i^{\zeta,(\text{eq})}(\mathbf{x}, t)\right),\end{aligned}\tag{4.52}$$

and the individual species relaxation matrix \mathbf{S}^σ and \mathbf{S}^ζ differ by their viscosity-related relaxation time τ_ν^σ and τ_ν^ζ :

$$\begin{aligned}\tau_\nu^\sigma &= 0.5 + 3\nu^\sigma, \\ \tau_\nu^\zeta &= 0.5 + 3\nu^\zeta.\end{aligned}\tag{4.53}$$

The remaining coefficients of the two relaxation matrix are equal the ones of the single component model [178]. For the rest of the setup, the mixture remains equimolar, and the pressure ratio is set to $p_{in}/p_{out} = 1.005$ on a 400×42 domain.

The analytical and numerical axial velocity profiles at $x = L$ are plotted in Fig. 4.6 for $\mathcal{R}_m = 10$ and $\mathcal{R}_\mu = 10$. No notable difference between the numerical models is seen in this regime, as all numerical profiles are identical and equal to the analytical ones.

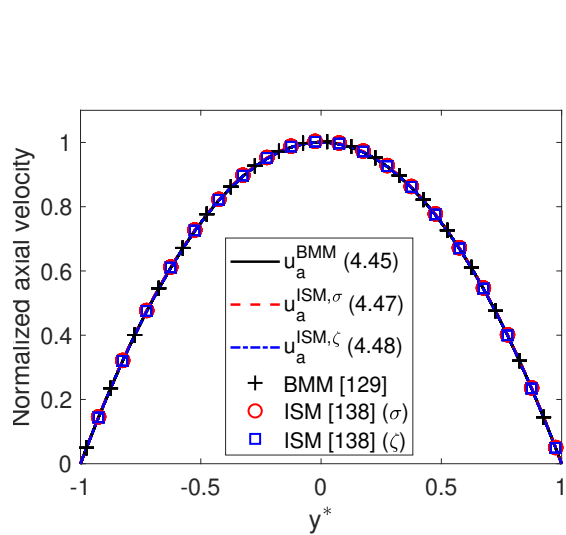


Figure 4.6 Mixture and species velocities in a binary plane Poiseuille flow at $Sc = 10$, $\mathcal{R}_m = 10$ and $\mathcal{R}_\mu = 10$. The axial velocities are normalized by the maximum velocity of u_a^{BMM} at $y^* = 0$. Solid, dashed and dash-dotted lines account for the analytical solutions, whereas numerical results are displayed with markers (+), (o) and (□).

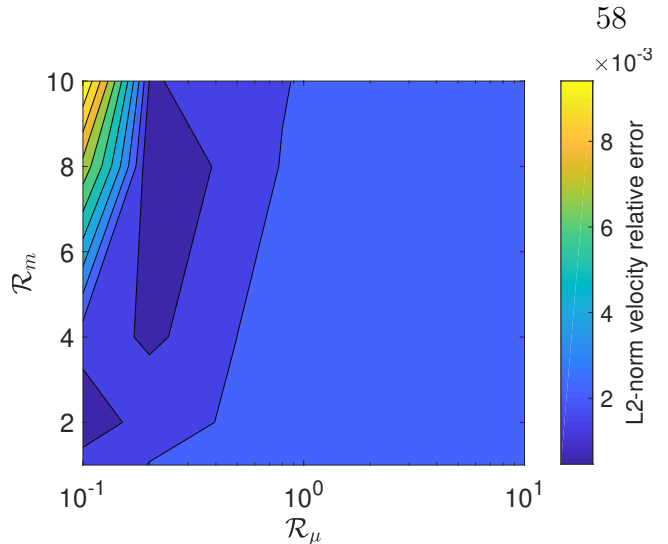


Figure 4.7 L^2 -norm velocity relative error for the mixture flow with the BMM in the viscous dominant regime. Equation (4.45) gives the reference velocity for the relative error calculation.

Figure 4.7 shows the relative error for the velocity with the BMM. The error globally increases with \mathcal{R}_m and may be attributed to the deviation of the equilibrium function given by Eq. (4.23) for the heaviest species. Even though Sc has been decreased at low \mathcal{R}_μ for stability purposes, the error stays relatively low even at these extreme values. Thus, the deviations caused by the different \mathcal{R}_m and \mathcal{R}_μ are negligible in the viscous dominant regime. The relative error field with the ISM has not been shown here as it exhibits the same behavior.

Diffusion dominant flow regime

In this regime, the diffusion-induced velocity is no longer negligible in comparison with the pressure-driven velocity. Thus, species velocities deviate not only from the parabolic profile, but also from the mixture velocity.

We study the influence of $\mathcal{R}_m = [2, 5, 10]$ and $\mathcal{R}_\mu = [0.1, 1, 10]$ on the different models and verify them against the analytical profiles. The Schmidt number for the following simulations is set to $Sc = 0.005$.

The numerical results with the ISM are first plotted in Fig. 4.8. The values are normalized by the maximum analytical mixture velocity u_a^{ISM} obtained with Eqs. (4.22),(4.47)-(4.48) at $y^* = 0$. With equal pure viscosities ($\mathcal{R}_\mu = 1$), the species velocities deviate slightly

from each other, regardless of the molecular mass ratio. However, the mixture velocity still complies with the single component profile. The velocity profiles are identical at $\mathcal{R}_\mu = 0.1$. At $\mathcal{R}_\mu = 10$, the gas separation phenomenon becomes noticeable in the sense that the species velocities increasingly separate from each other, the lighter species σ being the faster one. The species velocity profiles become also non-parabolic. As \mathcal{R}_m increases, the lighter species velocity moves further away from the mixture velocity, whereas the heavier species one almost matches the mixture one. This is expected as the mixture velocity is expressed as a barycentric velocity; therefore, the heavier a species is, the greater its velocity is closer to the mixture one. The variations of the velocity profiles with the different parameters are all accurately captured by the numerical model.

The results obtained with the BMM are shown in Fig. 4.9 and compared with u_a^{BMM} and u_a^{ISM} . Because the numerical model is a single fluid approach, individual species velocities are irrelevant here and thus are not displayed. The influence of \mathcal{R}_m or \mathcal{R}_μ is minimal on the mixture velocity profile, and the parabolic profile is recovered for all parameters. A deviation between the two analytical solutions emerges at $\mathcal{R}_\mu = 10$ and decreases as \mathcal{R}_m increases. Nevertheless, the numerical results with the BMM are in good agreement with its analytical counterpart u_a^{BMM} and thus verifies the model against the binary plane Poiseuille flow.

4.5 Discussion

The simulations performed in Sec. 4.4 highlight the similarities and differences between the compared LBM models. They both lead to the same numerical results in the limiting regimes (pure diffusion and viscous dominant regimes). Visible deviation was found in the case of the binary plane Poiseuille flow in the diffusion dominant regime for specific parameters. However, both still have been verified against their respective analytical solutions.

Indeed, the ISM exhibits independent velocities for the species which deviate from the mixture velocity profile at high viscosity ratio. Investigating the analytical solutions explains the asymmetry behind the species behaviour between low and high viscosity ratios. We first rewrite Eqs. (4.47) and (4.48):

$$\begin{aligned} u_a^{\text{ISM},\sigma}(y^{*2}) &= u_{max} \left[1 - y^{*2} + \delta^\sigma(y^*) \right] , \\ u_a^{\text{ISM},\zeta}(y^{*2}) &= u_{max} \left[1 - y^{*2} + \delta^\zeta(y^*) \right] , \end{aligned} \tag{4.54}$$

where $u_{max} = -\frac{H^2}{2\mu} \frac{dp}{dx}$, and $\delta^m(y^*)$ is obtained by identification with Eqs. (4.47)-(4.48).

With this form, the additional diffusion term becomes explicit: the deviation from the

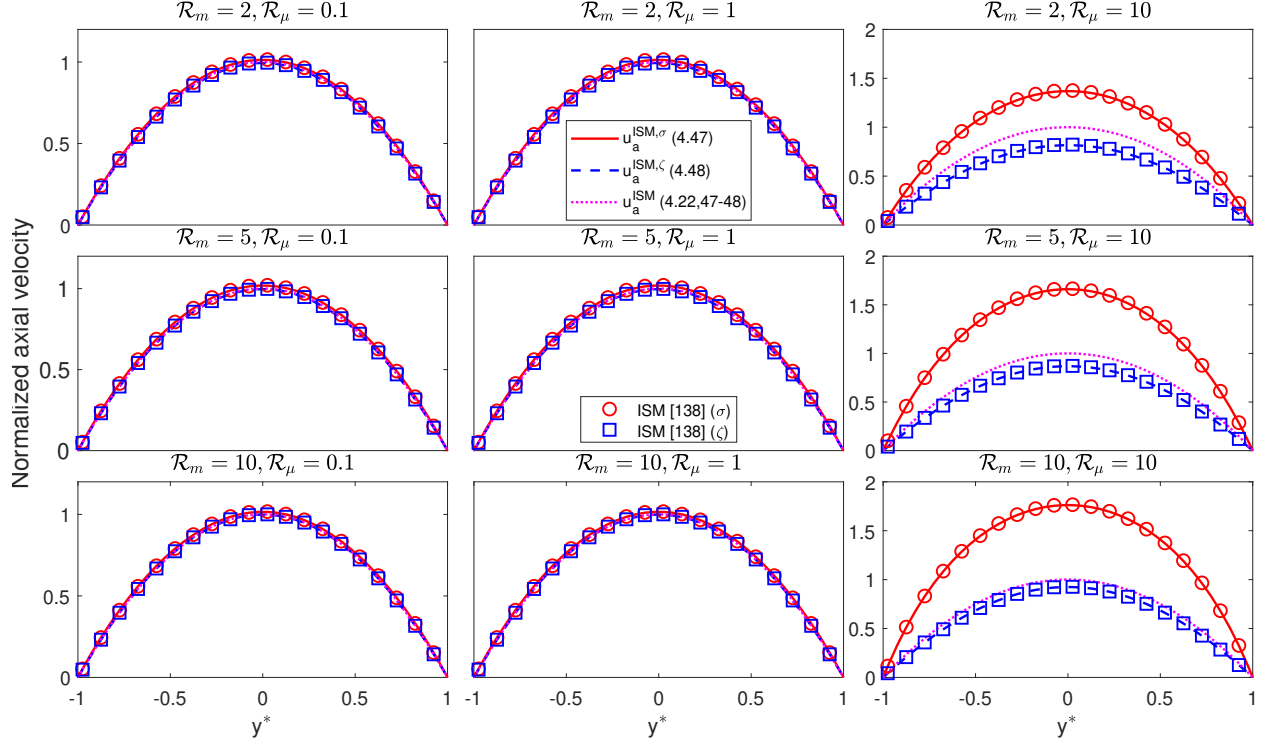


Figure 4.8 Species velocities with the ISM at $Sc = 0.005$ at $x = L$. The axial velocities are normalized by the maximum velocity of u_a^{ISM} at $y^* = 0$. Solid, dashed and dotted lines account for the analytical solutions and numerical results are displayed with markers (\circ and \square).

parabolic profile in the ISM is caused by the increase in magnitude of δ^σ and δ^ζ . Table 4.1 lists the extreme values for δ^σ and δ^ζ at $y^* = 0$ to qualitatively assess the impact of diffusion on the velocity profiles.

The non-parabolic velocity profiles for the species in Fig. 4.8 are in good agreement with the magnitude of δ^σ and δ^ζ . Also, the variations are non-uniform with \mathcal{R}_m or \mathcal{R}_μ which is consistent with the observations in Fig. 4.8.

The same derivation is applied to the mixture velocity:

$$u_a^{\text{ISM}}(y^*) = u_{max} \left[1 - y^{*2} + \delta(y^*) \right], \quad (4.55)$$

where $\delta = \frac{\rho^\sigma \delta^\sigma + \rho^\zeta \delta^\zeta}{\rho^\sigma + \rho^\zeta}$ is recovered by identification with Eqs. (4.22) and (4.47)-(4.48).

The additional term δ accounts for the difference between the two models as it does not exist for u_a^{BMM} . The deviation of the mixture velocity correlates with the deviation of the

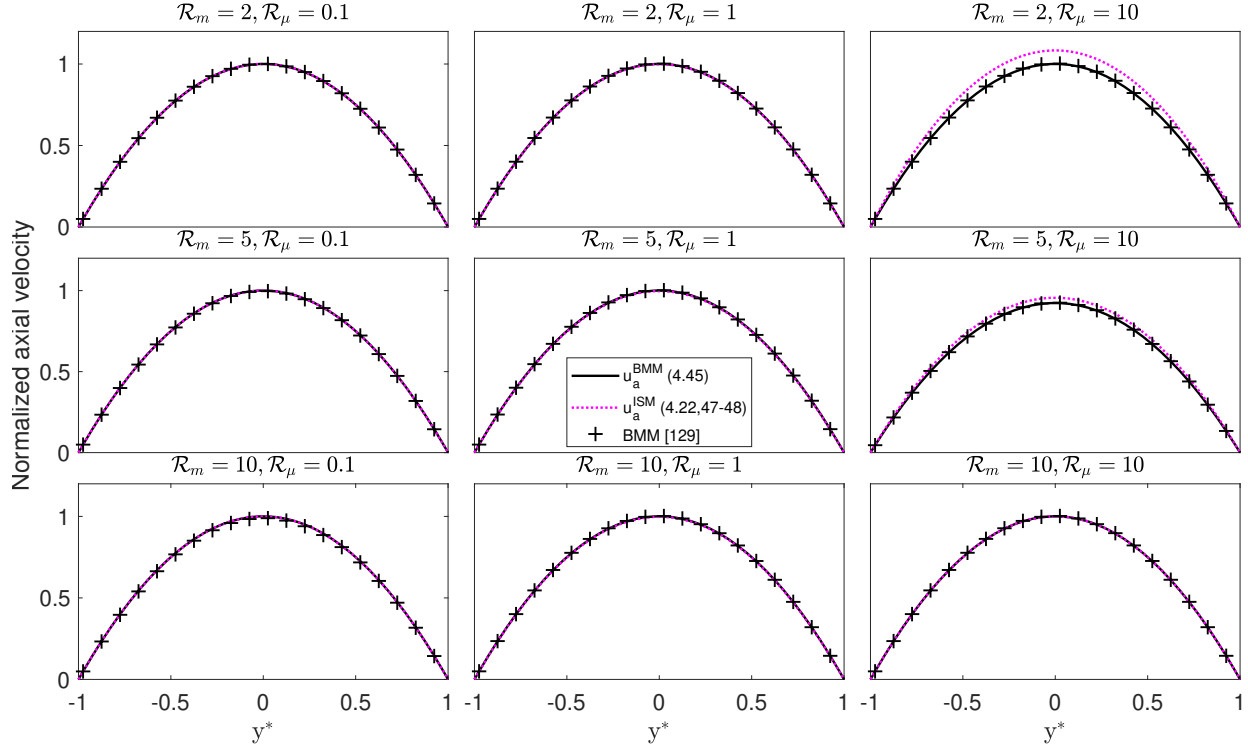


Figure 4.9 Mixture velocity with the BMM at $Sc = 0.005$. The axial velocities are normalized by the maximum velocity of u_a^{BMM} at $y^* = 0$. Solid and dotted lines account for the analytical solutions and numerical results are displayed with markers (+).

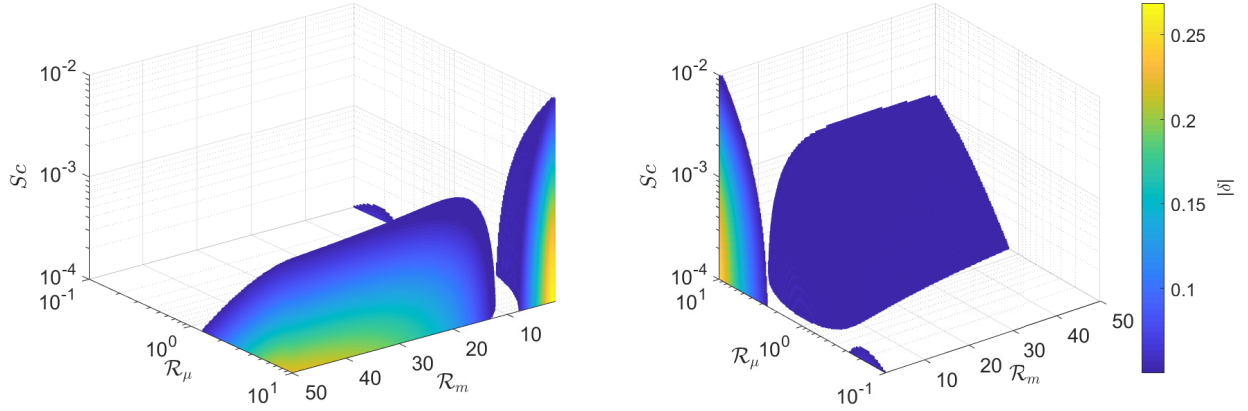
individual species velocities. Indeed, as pointed out by the values of δ in Table 4.1, notable difference is seen at $\mathcal{R}_\mu = 10$, which is the observation made in Fig. 4.9.

The numerical analysis performed in Sec. 4.4.4 is extended to a wider range of values for the different parameters. By studying the analytical velocity profiles, we display the absolute value of δ at $y^* = 0$ for $\mathcal{R}_m \in [1, 50]$, $\mathcal{R}_\mu \in [0.1, 10]$ and $Sc \in [10^{-4}, 10^{-1}]$ in Fig. 4.10. The analysis comforts the previous observations, since a deviation between the mixture velocity profiles is observed only at low Schmidt numbers, characteristic of diffusion dominant regimes. However, the two models remain similar even at low Schmidt regimes and low \mathcal{R}_μ . Therefore, the deviation between the models depends not only on Sc but also on other multicomponent parameters.

Figure 4.10 may not be directly used when simulating mixture flows with the LBM. The value of δ is dependent on more than just the three parameters of interest here (\mathcal{R}_m , \mathcal{R}_μ , Sc), such as the characteristic length of the domain, the molar fractions, etc. Therefore, the analysis on the analytical equations should be performed again to choose the right numerical model.

Table 4.1 Extreme values of δ^σ , δ^ζ and δ for $Sc = 0.005$. The values are given in lattice units.

\mathcal{R}_m	\mathcal{R}_μ	δ^σ (l.u)	δ^ζ (l.u)	δ (l.u)
2	0.1	4.8e-4	-8.4e-4	4.0e-4
2	1	1.1e-2	-8.0e-3	-1.6e-3
2	10	4.8e-1	-1.2e-1	8.3e-2
5	0.1	1.7e-5	-1.8e-5	1.2e-5
5	1	1.5e-2	-7.0e-3	-3.3e-3
5	10	7.2e-1	-1.0e-1	3.5e-2
10	0.1	6.3e-5	-4.6e-5	-3.6e-5
10	1	1.2e-2	-4.3e-3	-2.8e-3
10	10	7.6e-1	-7.6e-2	-1.0e-17

Figure 4.10 Variation of $|\delta|$ with \mathcal{R}_m , \mathcal{R}_μ and Sc . The contours of $|\delta|$ are displayed in Fig. 4.10 for values greater than 0.05. The views are oriented from the triplets $[\mathcal{R}_m, \mathcal{R}_\mu, Sc] = [50, 10, 10^{-4}]$ (left) and $[\mathcal{R}_m, \mathcal{R}_\mu, Sc] = [1, 0.1, 10^{-4}]$ (right). The values of $|\delta|$ are given in lattice units.

The present study has been carried out with arbitrary transport coefficients in lattice units. This unit system allows numerical verification on a wide range of parameter values but does not replace mixture flow simulations with physical properties for validation. Also, the likelihood of a diffusion dominant flow in the hydrodynamic regime is debatable. A qualitative analysis on the analytical equations in the hydrodynamic regime states that the gas separation phenomenon simulated with the ISM would become significant only in microchannels [175]. The hydrodynamic regime hypothesis would be inconsistent at this scale [87, 93]: Eqs. (4.47) and (4.48) become incomplete and erroneous because discrete effects have to be implemented in addition to the multicomponent flow dynamics. However, simulating at rarefied regimes remains beyond the scope of this work and limits any validation for now.

The differences between the two models could have been obtained analytically without any numerical simulation. They were actually expected, as the BMM was developed under assumptions which become invalid in the flow regime described in Sec 4.4.4 [137]. However, the present work focused on the verification of the numerical models against their macroscopic equations and the ability to capture the differences depending on the flow regime, which it has achieved through different simulations.

Numerical implementation of the two models has also outlined their limits, especially in the viscous dominant regime. Indeed, the ISM has been paired with a MRT collision operator when kinematic viscosities are very low, and the tuning of the Schmidt number has shown that both models are not suitable when diffusion effects are negligible. In this regime, the mixture flow reduces to a single component flow with mixture transport properties, which can be simulated with the standard single component model. Thus, we may assume that there is no advantage in using a multicomponent approach compared to a single fluid one within the hydrodynamic regime.

However, validating the gas separation phenomenon with physical parameters would weigh in favor of a multicomponent modeling, especially with the ISM. Indeed, the latter would give a more detailed representation on the species behavior than averaging over the mixture with the BMM.

4.6 Conclusion

Two LBM models for miscible binary mixture flows are introduced and compared against two test cases. The first model considers the mixture to be fully homogeneous and recovers the Navier-Stokes equations in the incompressible limit. Diffusion within the mixture occurs at the collision step in the relaxation matrix. The second model takes each species of the mixture into account, which individually recovers its own macroscopic equation. Diffusion coupling between the species is included through a body force.

Both models are implemented for a pure diffusion test case, and exhibit the same level of accuracy in this regime, although the ISM is slightly more sensitive to the molecular mass ratio than the BMM. The second test case is a 2D binary plane Poiseuille flow, whose analytical solutions for the two models are detailed. The models are compared to the analytical solutions in terms of molecular mass ratio, pure viscosity ratio and Schmidt number. The indifferentiability principle is satisfied and good agreement is found between numerical and analytical solutions. Numerical verification is achieved for both models and both models exhibit a first-order convergence rate for density and a second-order convergence rate for

velocity in the different flow regimes within the scope of our simulations. An analytical investigation points out a deviation between the models in the diffusion dominant flow regime, and the numerical results match this observation as well. The numerical results emphasize the potential differences between the multicomponent LBM models appearing at specific flow regimes.

This numerical comparison has some limits when it comes to real mixture flows. Actually, both models would give similar results in the hydrodynamic regime because the diffusion-induced velocity is of little magnitude when dealing with physical parameters. The discrepancies between the models become relevant in microscopic geometries. Simulating at this scale require the modeling of discrete effects characteristic of a rarefied regime. Thus, future work will focus on the extension of the ISM to rarefied regimes as it provides detailed information on the species behavior rather than the BMM.

Acknowledgments

This research was supported by a grant from the Collaborative Research and Training Experience (CREATE-481695-2016) program in Simulation-based Engineering Science (Génie Par la Simulation).

CHAPITRE 5 ARTICLE 2 : LATTICE BOLTZMANN MODELING OF MISCIBLE MULTICOMPONENT GAS MIXTURES IN THE RAREFIED REGIME

Michel Ho, Sami Ammar, Sébastien Leclaire, Marcelo Reggio and Jean-Yves Trépanier - soumis le 4 avril 2022 dans *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical* (Note : le texte présenté ici peut ne pas correspondre à la version finale).

5.1 Abstract

An extension to rarefied flow regimes of the lattice Boltzmann method-based model for miscible mixtures developed by Vienne et al. (*Physical Review E* 100.2 (2019): 023309) is presented. The model is applied to study the gas phase separation phenomenon in mixture flows that traditional macroscopic approaches fail to predict. The extension includes a wall function approach with an empirical coefficient to define an effective mean free path in solid geometries, which locally defines the kinematic viscosity and binary diffusion coefficients. The algorithm is also modified by a local multi-relaxation time collision operator and slip boundary conditions at solid walls. Gaseous mixture flow simulations are conducted through a 2D plane microchannel within the slip and early transition flow regimes. Despite a miscible gaseous phase, the mixture loses its homogeneity and independent velocity profiles for each component are observed in the rarefied regime and captured with the current modeling. In addition, the gas separation phenomenon increases with the rarefaction rate and the molecular mass ratio. The individual treatment of the species within mixture flows in the developed lattice Boltzmann model helps understanding the increasing independent behavior of the individual species within the mixture as the regime becomes more rarefied.

Keywords : Lattice Boltzmann, Gaseous mixtures, Rarefied regimes

5.2 Introduction

Understanding gas flow in rarefied regimes has received increasing interest over the past decades in various applications, including micro-filtering [58, 179], shale gas [57, 76, 180–182], or near-vacuum flows [26, 35, 183–185]. The Knudsen number (Kn) characterizes the rarefaction rate, and is defined as the ratio of the gas mean free path λ to the characteristic length of the domain H , so that $\text{Kn} = \lambda/H$. Fluid flow is generally classified with respect to Kn in the continuum ($\text{Kn} < 0.001$), slip ($0.001 \leq \text{Kn} < 0.1$), transition ($0.1 \leq \text{Kn} < 10$) or

free molecular ($\text{Kn} \geq 10$) flow regimes [77,186]. Continuum mechanics fail to predict the fluid flow behavior at high Kn regimes [77,187]. Simulating without the continuum assumptions on a smaller scale is thus required to recover the fluid behavior more reliably at high Kn .

Among the different mesoscale/microscale fluid numerical models, the lattice Boltzmann method (LBM) is an appropriate tool for flow simulation in the rarefied regime thanks to its mesoscopic approach based on the Boltzmann equation. Furthermore, its computational efficiency and simple implementation have encouraged several developments to extend the LBM to rarefied regimes. Based on the kinetic theory of gases, relationships between Kn and the collision operator have been developed to account for the decrease in particle-particle interactions at high Kn [101,188,189]. The collision operator has also been improved by implementing a multi-relaxation time (MRT) operator to avoid non-physical slip at solid interfaces by tuning the free parameters with the additional relaxation times [84,86,89]. Slippage effects have also been treated by developing slip boundary conditions, such as the diffuse bounce back (DBB) [82,84,86,188] or the combined bounce back and specular reflection (CBBSR) [83,87,130]. The resulting flow behavior has been validated against different analytical solutions and experimental data [86,87,90,94,143,189,190]. At high Kn flow regimes (transition and free molecular), different wall functions were developed to correct the effective gas mean free path in a bounded domain compared to a solid-free one [87,89,94,95,97,102]. Numerical results indicate that the mass flow rate was in good agreement with experimental data with these wall functions, whereas it was inaccurately estimated with analytical slip flow models [87,93,190]. Based on these models, rarefied gas flows have been simulated through complex microstructures [89,143] to underline the global influence of the rarefied effects on mass flow and highlight the need for a Boltzmann-equation-based numerical model to appropriately predict the fluid behavior.

Most of the LBM models in rarefied regimes have been developed by considering a single pure component flow. However, in practical applications, the gas phase is often a multicomponent gaseous mixture. For instance, the atmosphere is commonly modeled as a mixture of nitrogen and oxygen. In the continuum regime, no difference is noticeable: gaseous mixtures flow in a similar fashion as a single component flow with mixture transport properties. In the rarefied regime, gas phase separation appears: the species velocities tend to evolve independently from one another based on their individual properties [3,191]. This phenomenon is notably taken advantage of in micro-pumping [192,193], micro-filtration [72,194,195] or micro-mixing systems [196]. Few works have focused on multicomponent flow LBM modeling in the rarefied regime. Joshi et al. [110] have investigated diffusion at high Kn for ternary mixtures based on the multicomponent LBM model for the continuum regime developed by Luo et al. [124]. Kim et al. [118] have modeled diffusion slip in the rarefied regime with a

higher-order LBM model and validated it against other numerical methods. Rather than modifying the boundary conditions, Ma et al. [119] added an additional collision term to account for fluid-solid interaction and simulated a mixture of H_2 , H_2O and N_2 in fractal porous media. The MRT operator was also introduced by Bennett et al. [197] to relax viscosity and diffusivity independently, and transport coefficients were set to recover the Maxwell Stefan equations. A slip boundary condition was also developed to match the diffusion slip phenomenon. The aforementioned work all focused on diffusion transport, but did not consider rarefied multicomponent gas flows with a pressure gradient, which is the main driving flow mechanism in many applications. Diffusion and pressure gradient competing mechanisms within mixture flows lead to more complex flow dynamics. Indeed, as the transport of the gaseous species affects global pressure distribution, the species flow dynamics must be treated actively rather than passively through an advection equation [129, 138].

The integration of the species behavior into the hydrodynamic equations in the LBM has been first proposed by Asinari et al. [129], where viscosity and diffusion coefficients are simultaneously but independently treated through an MRT operator to enable simulations at arbitrary Schmidt numbers. The mixture flow is recovered as a barycentric flow to ensure the indifferentiability principle. The model has been extended to the rarefied regimes by Guo et al. [130] where the transport coefficients are accordingly expressed in terms of Kn to include rarefaction in the LBM algorithm. The CBBSR boundary condition has been implemented, and matched with a first-order Maxwell slip model for binary mixtures. Additional studies used the same algorithm [7, 131, 198–200] to understand the mixture flow behavior as a function of rarefaction rate, mixture composition or compressibility effects. However, the numerical results focused on the mixture quantities but did not consider the individual species ones (only partial density was investigated). Indeed, the multicomponent LBM model was initially developed to accurately recover the mixture quantities, while the computed individual species quantities have no physical meaning [129]. Yet, numerically recovering the species behavior is critical in various applications such as gas separation in micro-pumps [23] or in micro-mixing composition control [201].

Also, the given model is adequately developed for binary mixtures, but extending it to mixtures with an arbitrary number of species is not straightforward. Finally, the model has been specifically built so that the velocity difference between the species should be smaller than the mixture velocity. This may no longer be true in rarefied regimes: for instance, Naris et al. [9] reported a magnitude ratio of 3 at the centerline of a microchannel between the species velocities for a mixture of He-Xe in the transition flow regime.

Alternatively, an LBM model based on the individual species has been recently developed by

Vienne et al. [138] based on the theoretical work of Kerkhof et al. [10, 132, 202]. The model predicts the individual species flow in the continuum regime from the diffusion limit to the pressure gradient one, while the mixture flow is recovered with a barycentric expression. A parametric study between the “individual species model” (ISM) from Vienne et al. and the “binary mixture model” (BMM) from Asinari et al. in the continuum regime [203] exhibits different mixture velocity profiles at low Schmidt number and high molecular mass ratios and have been analytically verified. The main advantages of the ISM compared to the BMM within the continuum regime are the computation of species quantities and the flexibility to model any multicomponent flow with few computing efforts. Bringing these advantages to the rarefied regime by adapting the ISM could give detailed information on the species behavior.

The present work aims at extending the ISM in the slip and early transition flow regimes. The rigid-sphere model for gas particles is used to define Kn and express the different transport coefficients.

A local MRT collision operator is introduced for each species to offset numerical slip and recover the appropriate local macroscopic quantities. The modeling of slippage effects on solid walls with appropriate boundary conditions is discussed. Finally, to account for the early transition flow regime, a wall function approach is applied to the LBM algorithm to compute the effective mean free path in a bounded domain.

The rest of the paper is organized as follows. Section 5.3 introduces the ISM in the continuum regime from Vienne et al. [138]. Section 5.4 details the extension of the ISM to the rarefied flow regime, defined as the “r-ISM”. The present model is verified in a 2D microchannel geometry for various binary mixtures in Section 5.5 and specifically for mixture composition and species velocity profiles. Reference data include analytical and numerical models, such as the Direct Simulation Monte Carlo (DSMC) method, the McCormack kinetic model, and the adaptation of the BMM to the rarefied regime, or “r-BMM”. The impact of mixture composition and rarefaction rate on the species and mixture volumetric flow rates is also discussed. For verification purposes, numerical simulations will only be performed with two components and the mixture flow is assumed to be isothermal.

5.3 Multicomponent LBM model in the continuum regime

The individual species LBM model (ISM) as developed by Vienne et al. [138] for multicomponent mixtures is described by the following lattice Boltzmann (LB) equation:

$$f_i^k(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta_t, t + \delta_t) = f_i^k(\mathbf{x}, t) + \Omega(f_i^k(\mathbf{x}, t)) + \delta_t S_i^k(\mathbf{x}, t), \quad (5.1)$$

where f_i^k define the k -component discrete distribution function (there are k LB equations for a k -component mixture). At the right-hand side of the equation, the collision process in the LBM is modeled by a BGK-type operator Ω :

$$\Omega \left(f_i^k(\mathbf{x}, t) \right) = -\frac{\delta_t}{\tau_\nu^k} \left(f_i^k(\mathbf{x}, t) - f_i^{k,(\text{eq})}(\mathbf{x}, t) \right), \quad (5.2)$$

where the relaxation time τ_ν^k is related to the k -component partial kinematic viscosity [138] ν^k :

$$\tau_\nu^k = 0.5 + \frac{\nu^k}{c_s^2 \delta_t}, \quad (5.3)$$

where $c_s = c/\sqrt{3}$ is the sound speed in LBM. The lattice speed $c = \delta_x/\delta_t$ is related to the spatial step δ_x and the time step δ_t . In practice, the lattice speed c and spatial step δ_x are usually taken as unity, so that $c = \delta_x = \delta_t = 1$ and $c_s = 1/\sqrt{3}$. The equilibrium distribution functions $f_i^{k,(\text{eq})}$ are specific to each individual species:

$$f_i^{k,(\text{eq})} = \omega_i \rho^k \left[1 + \frac{\mathbf{u}^k \cdot \boldsymbol{\xi}_i}{c_s^2} + \frac{(\mathbf{u}^k \cdot \boldsymbol{\xi}_i)^2}{2c_s^4} - \frac{\mathbf{u}^k \cdot \mathbf{u}^k}{2c_s^2} \right], \quad (5.4)$$

where ρ^k and \mathbf{u}^k are the k -component density and velocity. The source term S_i^k defines the discrete contribution of a body force \mathcal{F}^k exerted on the k -th component in the LBM algorithm. As mentioned by the original authors, the scheme of Guo et al. [171] is implemented:

$$S_i^k = \left(1 - \frac{\delta_t}{2\tau_\nu^k} \right) \omega_i \left[\frac{\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{u}^k}{c_s^2} + \frac{(\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{u}^k) \boldsymbol{\xi}_i}{c_s^4} \right] \cdot \mathcal{F}^k. \quad (5.5)$$

The discrete velocities $\boldsymbol{\xi}_i$ account for the available directions to stream and collide for the distribution functions. They are equal for each species of the mixture as they are simulated on the same fixed Cartesian grid. Figure 5.1 depicts the D2Q9 discretization stencil with 9 discrete velocities, commonly used in 2D simulations. The lattice weights ω_i are related to the different $\boldsymbol{\xi}_i$ as:

$$\omega_i = \begin{cases} 4/9 & \text{for } i = 0, \\ 1/9 & \text{for } i = 1, 3, 5, 7, \\ 1/36 & \text{for } i = 2, 4, 6, 8. \end{cases} \quad (5.6)$$

The different order moments of the discrete distribution functions recover the species density

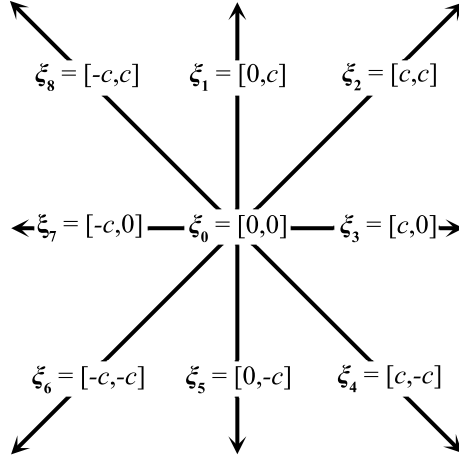


Figure 5.1 D2Q9 discretization stencil

and momentum:

$$\begin{aligned}\rho^k &= \sum_i f_i^k, \\ \rho^k \mathbf{u}^k &= \sum_i \boldsymbol{\xi}_i f_i^k + \frac{1}{2} \mathcal{F}^k.\end{aligned}\tag{5.7}$$

So far, only species viscosities are taken into account in the collision step. To model the interaction between the species within the mixture, a diffusion force is introduced and writes for a N -species mixture as:

$$\mathcal{F}_D^k = -p \sum_{l=1, l \neq k}^N \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l),\tag{5.8}$$

where p is the total pressure, χ^k and χ^l are respectively the k - and l -component molar fractions, and the binary diffusion coefficient between them is D^{kl} .

With a Chapman-Enskog analysis [138], the ISM recovers the following macroscopic equations for the k -th component:

$$\begin{aligned}\frac{\partial \rho^k}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho^k \mathbf{u}^k) &= 0, \\ \frac{\partial (\rho^k \mathbf{u}^k)}{\partial t} + (\rho^k \mathbf{u}^k) \cdot \nabla \mathbf{u}^k &= -\nabla p^k + \nabla \cdot \left[\eta^k \left(\nabla \mathbf{u}^k + (\mathbf{u}^k)^T \right) \right] \\ &\quad - p \sum_{l=1, l \neq k}^N \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l),\end{aligned}$$

where η^k is the k -component dynamic viscosity.

Finally, the different molecular masses among the species are treated with an additional body force \mathcal{F}_B^k to account for a variable pseudo sound speed and to enable simulations for all species on the same Cartesian grid and discretization stencil:

$$\mathcal{F}_B^k = \left(1 - \frac{m^k}{m^{\text{ref}}}\right) c_s^2 \nabla \rho^k, \quad (5.9)$$

where m^k is the k -component molecular mass and c_s is the sound speed related to the reference species of molecular mass m^{ref} . The k -component density gradient $\nabla \rho^k$ is computed with the nearest neighbors isotropic finite difference [176]:

$$\nabla \rho^k(\mathbf{x}) = \frac{1}{c_s^2} \sum_i \omega_i \xi_i \rho^k(\mathbf{x} + \xi_i). \quad (5.10)$$

Thus, the resulting total body force \mathcal{F}^k in (5.5) and (5.7) becomes $\mathcal{F}^k = \mathcal{F}_D^k + \mathcal{F}_B^k$.

By defining the species pseudo sound speed [138] as $c_s^k = c_s \sqrt{m^k/m^{\text{ref}}}$, the LB equation of state for the partial pressure p^k writes as:

$$p^k = \rho^k (c_s^k)^2. \quad (5.11)$$

In practice, the reference species is taken as the lightest species and set to a unitary molecular mass $m^{\text{ref}} = 1$, while the other molecular masses are accordingly rescaled. To recover the mixture quantities from the calculation on the individual species, the mixing rule is applied so that the equations for the species quantities extend to the mixture one with simple summation [138, 203]:

$$\begin{aligned} p^{\text{mix}} &= \sum_{k=1}^N p^k = \sum_{k=1}^N \rho^k (c_s^k)^2 \\ \rho^{\text{mix}} &= \sum_{k=1}^N \rho^k, \\ \sum_{k=1}^N \chi^k &= 1. \end{aligned} \quad (5.12)$$

with p^{mix} and ρ^{mix} the mixture (or total) pressure and density, respectively. A barycentric expression of the mixture velocity \mathbf{u}^{mix} is introduced to satisfy the indifferentiability

principle [129, 203]:

$$\mathbf{u}^{\text{mix}} = \frac{\sum_{k=1}^N \rho^k \mathbf{u}^k}{\rho^{\text{mix}}}. \quad (5.13)$$

5.4 Adaptation to the rarefied regime

The work of Vienne et al. [138] on multicomponent flow modeling with the LBM has been introduced in section 5.3 in the continuum regime. We detail in the following subsections the different modifications to the original model to build the r-ISM. We first derive an alternative relationship between the different transport coefficients and Kn established with the rigid-sphere modeling of gas particles. We also introduce the wall function approach to retrieve an effective mean free path as fluid particles are affected by the boundedness of the domain. The MRT operator for each species is subsequently introduced. Finally, the slip velocity at solid walls is numerically modeled by adapting the single component slip boundary conditions to binary mixtures.

5.4.1 Mixture transport coefficients and rarefaction rate

Transport coefficients and molecular properties were arbitrarily chosen in the LB unit system in a former parametric study [203]. Simulation of real mixtures requires the use of the kinetic theory of gases to express diffusivity and viscosity in terms of the species molecular properties, regardless of the flow regime.

Before deriving the different transport coefficients, we must define the mean free path of a gas particle within a mixture. We first remind that the mean free path λ defines the mean distance traveled by a particle between two consecutive collisions. We can rewrite this definition [28] as the ratio of the average molecular speed \bar{v}_{ave} to the collision frequency ratio z . In the case of a single component ($N = 1$), the mean free path is:

$$\lambda = \frac{\bar{v}_{\text{ave}}}{z}. \quad (5.14)$$

For a N -species mixture, however, (5.14) must be rewritten as k -particles self-collide, but also collide with the other components of the mixtures. Therefore, (5.14) is modified to take these additional collisions into account:

$$\lambda^k = \frac{\bar{v}_{\text{ave}}^k}{\sum_{l=1}^N z^{kl}}, \quad (5.15)$$

where λ^k and \bar{v}_{ave}^k are the k -component mean free path and average molecular speed, and z^{kl} defines the collision frequency between k -particles and l -particles. Finally, the mixture mean free path λ^{mix} is obtained with Dalton's mixing rule [204]:

$$\lambda^{\text{mix}} = \sum_{k=1}^N \chi^k \lambda^k. \quad (5.16)$$

From the breakdown of the mean free path expression, the k -component mean free path is related to the thermodynamic and molecular properties as [28]:

$$\lambda^k = \left(\frac{p^k}{k_B T} \pi (d^k)^2 \sqrt{2} + \sum_{l \neq k}^N \frac{p^l}{k_B T} \pi (d^{kl})^2 \sqrt{\frac{m^k}{m^{kl}}} \right)^{-1}, \quad (5.17)$$

with k_B , T and d^k respectively the Boltzmann constant, the gas temperature, and the k -component molecular diameter. The binary molecular diameter and mass d^{kl} and m^{kl} are given by the following equations [28]:

$$d^{kl} = \frac{d^k + d^l}{2}, \quad (5.18)$$

$$\frac{1}{m^{kl}} = \frac{1}{m^k} + \frac{1}{m^l}, \quad (5.19)$$

and the k -component Knudsen number becomes:

$$\text{Kn}^k = \frac{\lambda^k}{H}. \quad (5.20)$$

Details of the theoretical derivation of (5.15)-(5.20) are given in Appendix A.

The l -component mean free path λ^l and the mixture mean free path λ^{mix} are also linked to the k -component mean free path λ^k with help of (5.15)-(5.16):

$$\forall l \neq k, \quad \lambda^l = \left(\frac{z^{ll} + z^{kl}}{z^{kk} + z^{lk}} \sqrt{\frac{m^k}{m^l}} \right) \lambda^k, \quad (5.21)$$

$$\lambda^{\text{mix}} = \left(\lambda^k + \sum_{l \neq k}^N \chi^l \frac{z^{ll} + z^{kl}}{z^{kk} + z^{lk}} \sqrt{\frac{m^k}{m^l}} \right) \lambda^k, \quad (5.22)$$

and their respective Knudsen numbers Kn^l and Kn^{mix} are obtained by dividing (5.21) and (5.22)

with H . An alternative way of writing Kn^{mix} can also be obtained with (5.16) and (5.20):

$$\text{Kn}^{\text{mix}} = \frac{1}{H} \left(\sum_{k=1}^N \chi^k \lambda^k \right) = \sum_{k=1}^N \chi^k \text{Kn}^k. \quad (5.23)$$

We now derive Kn^k -dependent formulas for mass diffusivity and kinematic viscosity, although the following expressions can be expressed in terms of any Knudsen number with help from (5.20)-(5.22). Transport coefficients can be written as a function of the molecular properties thanks to the kinetic theory of gases [138]. Thus, the expression for the k -component pure dynamic viscosity η_0^k is [140]:

$$\eta_0^k = \frac{5}{16} \frac{\sqrt{\pi k_B m^k T}}{\pi (d^k)^2} \quad (5.24)$$

where the subscript “0” identifies the calculation for a pure component ($N = 1$). By combining (5.17), (5.20) and (5.24), η_0^k can be rewritten as:

$$\eta_0^k = \frac{5\sqrt{2}\chi^k p}{16} \sqrt{\frac{\pi m^k}{k_B T}} \left[1 + \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{l=1, l \neq k}^N \frac{\chi^l (d^{kl})^2}{\chi^k (d^k)^2} \sqrt{\frac{m^k}{m^{kl}}} \right] \text{Kn}^k H. \quad (5.25)$$

Equation (5.25) is insufficient to substitute in the LBM algorithm. Indeed, the partial dynamic viscosities η^k deviate from their pure counterpart η_0^k when mixed [10, 138], as one species is also subject to interspecies collisions at the molecular level (in other words, $\eta^k \neq \chi^k \eta_0^k$). A simple and accurate approximation to recover the η^k is given by Wilke’s law:

$$\eta^k = \frac{\chi^k \eta_0^k}{\sum_{l=1}^N \chi^l \Phi_{kl}}, \quad (5.26)$$

with the coefficients Φ_{kl} defined as:

$$\Phi_{kl} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(1 + \frac{m^k}{m^l} \right)^{-\frac{1}{2}} \left[1 + \left(\frac{\eta_0^k}{\eta_0^l} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{m^l}{m^k} \right)^{\frac{1}{4}} \right]^2. \quad (5.27)$$

Finally, the partial kinematic viscosities ν^k are obtained with:

$$\nu^k = \frac{\eta^k}{\rho^k}, \quad (5.28)$$

and again, the mixture dynamic and kinematic viscosities are obtained with simple mixing

rule [10]:

$$\eta^{\text{mix}} = \sum_{k=1}^N \eta^k, \quad (5.29)$$

$$\nu^{\text{mix}} = \frac{\eta^{\text{mix}}}{\rho^{\text{mix}}}. \quad (5.30)$$

For readability purposes, the final relationship between Kn^k and ν^k is not explicitly written, but the combination of (5.25), (5.26) and (5.28) recovers it.

The binary diffusion coefficient D^{kl} between the k -th and l -th component writes as [140]:

$$D^{kl} = \frac{3}{16\pi} \frac{k_B T}{(d^{kl})^2} \frac{k_B T}{p} \sqrt{\frac{2\pi k_B T}{m^{kl}}}, \quad (5.31)$$

and combining it with (5.17) and (5.20) gives:

$$D^{kl} = \frac{3}{16} \sqrt{\frac{2\pi k_B T}{m^{kl}}} \left[\chi^k \sqrt{2} \left(\frac{d^k}{d^{kl}} \right)^2 + \sum_{l=1, l \neq k}^N \chi^l \sqrt{\frac{m^k}{m^{kl}}} \right] \text{Kn}^k H. \quad (5.32)$$

One must point out that even though the derived formulas for ν^k and D^{kl} as a function of Kn^k greatly deviate with the other works with the LBM [7, 87, 130, 131], the recovered transport coefficients are identical. The difference lies in the different interpretation of the Knudsen number, as it relates to particle-particle collision rather than a direct relationship with dynamic viscosity. The current kinetic modeling of gas particules also deviates from the use of a realistic potential in the original model [138] as (5.15)-(5.17) are only valid for the rigid-sphere model [205, 206].

5.4.2 Effective mean free path and wall function approach

Equation (5.17) shows that the mean free path of a gas particle globally increases as pressure decreases and/or as temperature increases. However, this expression may no longer be valid in bounded domains. For weakly rarefied flows ($\text{Kn} < 0.1$), a particle within a geometry is more likely to collide with another particle and therefore does not “see” the solid walls. When Kn increases, the mean free path approaches the characteristic length; a gas particle may collide with the solid wall rather than a gas particle collision and thus reduces its mean free path. Thus, rarefied gas simulations in bounded domains use an effective mean free path expression λ_{eff}^k :

$$\lambda_{\text{eff}}^k = \lambda^k \psi(\text{Kn}), \quad (5.33)$$

where $\psi(\text{Kn})$ is the wall function accounting for the containment of the gas within a solid geometry. In addition, the transport coefficients are also redefined since they depend on the mean free path according to the kinetic theory of gases. By taking advantage of this dependency, Michalis et al. [95] developed a Bosanquet-type approximation for ψ by averaging the fluid viscosity over the cross-section of the flow:

$$\psi(\text{Kn}) = \frac{1}{1 + 2 \text{Kn}}. \quad (5.34)$$

Equation (5.34) has been implemented for single component flows at high Kn in LBM [90, 94, 105, 143, 144, 207], and extended to multicomponent flow modeling in few works. The coefficient “2” in the denominator of (5.34) has been originally chosen to fit with Direct Simulation Monte Carlo (DSMC) results [95]. However, the simulations in the reference article have only been performed with a pure component (Nitrogen, N_2), and no investigation has been performed with gas mixtures to the authors’ knowledge. The same coefficient in (5.34) was set to 1.2 in the rarefied adaptation of the BMM (r-BMM) to fit with the reference data [7]. From these observations, there is no reason to believe that one should use (5.34) as is for gas mixtures. Also, the decrease of the mean free path in highly rarefied regimes for a component k in a gas mixture is coupled with the other components. Indeed, not only λ^k reduces because of the bounded geometry, but also because the other components mean free path decreases, therefore increasing the particle-particle collision frequency. To include both effects in the calculation of the effective mean free path, (5.34) is rewritten in terms of Kn^{mix} as:

$$\psi(\text{Kn}^{\text{mix}}) = \frac{1}{1 + C_\psi \text{Kn}^{\text{mix}}}, \quad (5.35)$$

with C_ψ an empirical coefficient to be determined. In practice, the k -component effective mean free path λ_{eff}^k is calculated with (5.33) and (5.35), and the effective mixture mean free path $\lambda_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ is obtained with (5.16). The resulting effective transport coefficients η_{eff}^k , ν_{eff}^k , and D_{eff}^{kl} are reconstructed through the different expressions derived in section 5.4.1 by replacing Kn^k by:

$$\text{Kn}_{\text{eff}}^k = \text{Kn}^k \psi(\text{Kn}). \quad (5.36)$$

5.4.3 Collision operator in the rarefied regime

The BGK-type collision operator introduces numerical slip at solid boundaries [86, 87, 90]. In single component modeling, this discrepancy is overcome by the implementation of an MRT operator [81]. The additional relaxation times allow free-tuning of the parameters to offset the numerical slip [86]. This adaptation still holds true for the current multicomponent

modeling, as the collision process of each LB equation only treats viscosity effects. The collision operator in (5.2) becomes then:

$$\Omega(f_i^k(\mathbf{x}, t)) = -\mathcal{M}^{-1} \mathbf{S}^k \mathcal{M} (f_i^k(\mathbf{x}, t) - f_i^{k,(\text{eq})}(\mathbf{x}, t)), \quad (5.37)$$

where \mathcal{M} is the transformation matrix from the distribution functions to the moment space. As simulations are performed on the same D2Q9 discretization scheme, the same coefficients for \mathcal{M} are applied for each species as given by Guo et al. [87].

The relaxation matrix \mathbf{S}^k is a species diagonal matrix whose relaxation times are related to species physical moments. It writes for the D2Q9 scheme as:

$$\mathbf{S}^k = \text{diag}(\tau_\rho^k, \tau_e^k, \tau_\epsilon^k, \tau_j^k, \tau_q^k, \tau_j^k, \tau_q^k, \tau_\nu^k, \tau_\nu^k)^{-1}. \quad (5.38)$$

The relaxation time τ_ν^k is similar to the one for the BGK collision operator, and is given by combining (5.3) and (5.28) for rarefied regimes. Among the other free relaxation times, the energy flux-related relaxation time τ_q^k is modified to achieve zero numerical slip [86]:

$$\tau_q^k = \frac{8 - (\tau_\nu^k)^{-1}}{8(2 - (\tau_\nu^k)^{-1})}, \quad (5.39)$$

while the remaining coefficients of the relaxation matrix also follow Guo et al. [87].

As the relaxation operator also affects the inclusion of the body force in the algorithm in (5.5), the source term calculation with the MRT implementation rewrites as:

$$S_i^k = \left[\mathcal{M}^{-1} \left(\mathcal{I} - \frac{1}{2} \mathbf{S}^k \right) \mathcal{M} \right] \cdot \omega_i \left[\frac{\boldsymbol{\xi}_i - \mathbf{u}^k}{c_s^2} + \frac{(\boldsymbol{\xi}_i \cdot \mathbf{u}^k) \boldsymbol{\xi}_i}{c_s^4} \right] \cdot \mathcal{F}^k, \quad (5.40)$$

where \mathcal{I} is the identity matrix (\mathcal{I} is a 9×9 matrix for the D2Q9 discretization scheme).

5.4.4 Boundary conditions in the LBM for gaseous mixtures in the rarefied regime

Slippage effects in fluid flows become no longer negligible in the rarefied regime. For instance, Wang et al. [182] acknowledges a doubling in total flow rate at $\text{Kn} = 0.4$ compared to the no-slip hypothesis. Therefore it is crucial to accurately model fluid-solid interactions in the rarefied regime. To model slip velocity, the most common rarefied boundary conditions are a variation of the no-slip bounce back (BB) boundary condition, namely the combined

bounce-back and specular reflection (CBBSR) and the diffuse bounce back (DBB) boundary conditions.

The CBBSR treats a proportion r^k of k -particles to bounce back against solid walls whereas the rest $(1-r^k)$ undergoes specular reflection (SR) and preserves their tangential momentum [83]. The resulting post-collision for each distribution function writes as:

$$f_{i,\text{CBBSR}}^k(\mathbf{x}, t) = r^k f_{i,\text{SR}}^k(\mathbf{x}, t) + (1 - r^k) f_{i,\text{BB}}^k(\mathbf{x}, t), \quad (5.41)$$

where $f_{i,\text{SR}}^k$ and $f_{i,\text{BB}}^k$ are the post-collision distribution values respectively under BB and SR boundary conditions. The DBB boundary condition combines bounce back with the Maxwellian diffuse reflection [82] (DR) weighted by a coefficient β^k , mimicking the scattering behavior of a particle colliding a rough surface:

$$f_{i,\text{DBB}}^k(\mathbf{x}, t) = \beta^k f_{i,\text{DR}}^k(\mathbf{x}, t) + (1 - \beta^k) f_{i,\text{BB}}^k(\mathbf{x}, t), \quad (5.42)$$

where $f_{i,\text{DR}}^k$ is the post-collision distribution value under diffuse reflection boundary condition.

Despite their different modeling, the CBBSR and the DBB boundary conditions are reportedly equivalent [92] and simulates the same slip velocity by setting $r^k = 1 - \beta^k/2$. Both have been successfully implemented for rarefied gas simulations and even with mixture flow simulations [7, 130, 131]. One of the advantages in favor of the DBB boundary condition is its implementation for arbitrary shapes [93], while the non-locality of the CBBSR treatment makes it more suitable to planar geometries. The calculation of r^k and β^k is correlated with the macroscopic slip model. The first-order Maxwell slip model for a pure component describes the tangential velocity u_s in the vicinity of the wall [5, 10]:

$$u_s = C_1 \lambda \left. \frac{\partial u}{\partial \mathbf{n}} \right|_{\text{wall}}, \quad (5.43)$$

where C_1 is the velocity slip coefficient and is obtained from various experiments [31, 43, 208]. Equation (5.43) highlights the increase in magnitude of u_s with the mean free path (and thus Kn), showing that the slip velocity cannot be neglected in rarefied regimes. We write the counterpart expression for the mixture slip velocity u_s^{mix} :

$$u_s^{\text{mix}} = C_1^{\text{mix}} \lambda^{\text{mix}} \left. \frac{\partial u^{\text{mix}}}{\partial \mathbf{n}} \right|_{\text{wall}}, \quad (5.44)$$

where C_1^{mix} is mixture velocity slip coefficient and $(\partial u^{\text{mix}}/\partial \mathbf{n})|_{\text{wall}}$ is the mixture velocity gradient in the orthogonal direction to the wall in the vicinity of the wall.

Unlike the approach used in the r-BMM [7, 130, 131], the implemented rarefied boundary conditions in the ISM need to recover the species slip velocity rather than the mixture slip velocity. Therefore, the coefficients r^k (or β^k) are different for each component. The first-order Maxwell slip model remains valid for the k -component within a mixture, and writes as:

$$u_s^k = C_1^k \lambda^k \left. \frac{\partial u^k}{\partial \mathbf{n}} \right|_{\text{wall}}, \quad (5.45)$$

where λ^k is expressed through (5.15) instead of (5.14). The mixture velocity slip coefficient has been experimentally and theoretically investigated [3, 8, 37, 209], but there has not been any study of the individual species counterpart to the authors' knowledge. As a first approximation, we set the species velocity slip coefficient to be equal to the mixture one, $C_1^k = C_1^{\text{mix}}$. A theoretical model has been developed from the linearized Boltzmann equation [12] to retrieve C_1^{mix} and details are given in Appendix B. The model is only valid for binary mixtures ($N = 2$), which is sufficient within the scope of our simulations (mixture slip coefficients have been investigated in other works when dealing with more than two components [210, 211]). Each equation of the individual species model behaving as a single component equation with body force coupling, we can apply the results of the boundary scheme analysis of Guo et al. [130] to set the rarefied boundary coefficients to simulate the correct species slip velocity:

$$r^k = 1 - \frac{\beta^k}{2} = \frac{C_1^{\text{mix}} \lambda^k}{C_1^{\text{mix}} \lambda^k + 3\nu^k}. \quad (5.46)$$

Although both CBBSR and DBB boundary conditions recover the same slip velocity through (5.46), coefficients may fall outside their range of applicability when simulating real mixtures. For instance, an equimolar Helium-Argon (He-Ar) mixture under atmospheric pressure and temperature ($p = 1$ atm, $T = 298$ K) gives $r^{\text{He}} = 0.42$ and $r^{\text{Ar}} = 0.40$. Thus, it results in $\beta^{\text{He}} = 1.16$ and $\beta^{\text{Ar}} = 1.20$, which are non-physical values. Indeed, having a value of β greater than unity would mean that more than the whole distribution function undergoes diffuse behavior when colliding with solid walls. From this observation, the CBBSR boundary condition is chosen as it covers a wider range of mixtures without the above-mentioned anomaly [77, 130].

5.5 Numerical results and discussion

Various test cases are performed in this section to verify the capabilities of our model in simulating rarefied gas mixtures. All of the simulations are performed on the same geometry, a 2D plane microchannel of height H and of length L . All mixtures simulated are binary

mixtures for comparison purposes: we set $N = 2$ for the equations developed above, and identify the two components by their chemical symbol, with the lightest one being the reference species (for instance, He is the reference species in a He-Ar mixture). The indifferentiability principle of the r-ISM is verified through a single component flow. Species molar distribution and velocity profiles are compared against analytical and numerical solutions at different rarefaction rates and for various mixtures. Finally, the influence of mixture composition and rarefaction rate on total and species volumetric flow rate is studied.

5.5.1 Indifferentiability principle

Before carrying any multicomponent flow simulation, a verification test case is performed for a single component to show the accuracy of the solver in the slip flow regime, as well as to verify the indifferentiability principle. The 2D domain is discretized with $n_x \times n_y = 400 \times 21$ grid nodes, chosen from a preliminary analysis to achieve mesh independent results. A pressure gradient is imposed along the microchannel by applying Zou and He pressure boundary conditions [212] at the inlet and the outlet of the domain with the presence of a body force [138]. Solid walls are located at $y = 0$ and $y = H$, and CBBSR boundary conditions are applied as described in section 5.4.4.

Because we simulate a single component fluid (He is considered here) with a multicomponent approach, we differentiate the two components with distinct labels $u^{\text{He},1}$ and $u^{\text{He},2}$, with $\chi^{\text{He},1} = 0.4$ and $\chi^{\text{He},2} = 1 - \chi^{\text{He},1} = 0.6$. The different properties of He (mean free path, viscosity, diffusion coefficient, etc.) are calculated by means of the molecular characteristics given in table 5.1.

Equation (5.17) shows that Kn is a local quantity as pressure or molar fraction may vary along the domain. Thus, we define a reference Knudsen number Kn^{ref} based on the lightest species of the binary mixture, and using outlet flow conditions. The different quantities used in the LB algorithm are then accordingly computed with the local parameters. Finally, no wall function correction is required as simulations are performed in the slip flow regime, so that $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{ref}} = \text{Kn}^{\text{ref}} = 0.1$.

The r-ISM is compared in figure 5.2 to the analytical velocity profile $u_{\text{s-NS}}$ obtained with the slip Navier-Stokes equations [10, 86]:

$$u_{\text{s-NS}}(y^*) = -\frac{H^2}{2\eta} \frac{dp}{dx} \left[y^* - (y^*)^2 + C_1^{\text{He}} \text{Kn}^{\text{ref}} \right], \quad (5.47)$$

where $y^* = y/H$ and $C_1^{\text{He}} = 1.116$ (obtained in Appendix B). The velocity profiles at the outlet of the domain ($x^* = x/L = 1$) are shown for a pressure ratio $\mathcal{R}_p = p_{\text{in}}/p_{\text{out}} = 1.1$. The

Table 5.1 Molecular characteristics [2]. The molecular mass is given in Daltons (Da) and the molecular diameter is given in Angstrom (\AA).

Name	Symbol (Unit)	Mass (Da)	Diameter (\AA)
Hydrogen	H ₂	2.016	2.745
Helium	He	4.003	2.193
Neon	Ne	20.18	2.602
Argon	Ar	39.94	3.659
Krypton	Kr	83.80	4.199
Xenon	Xe	131.3	4.939

results are normalized with the maximum velocity of $u_{s\text{-NS}}$ at $y^* = 0.5$ in figure 5.2(a). Species velocity profiles are indistinguishable from each other, and both are in good agreement with the analytical solution.

In addition to the velocity profiles, a convergence analysis is performed at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.1$ on the single component case. The velocity L²-norm relative error (see (38) in Tucny et al. [93]) is computed against different spatial steps δ_x . The results displayed in figure 5.2(b) show that the r-ISM exhibits a first order convergence rate. This matches the convergence rate obtained on the single component rarefied LBM model [93]. Therefore, the present multicomponent model reduces to a single component one with the equivalent behavior when the components are identical, thus verifying the indifferenciability principle.

5.5.2 Binary mixture under high pressure ratio

The capabilities of the numerical model are now evaluated for a multicomponent mixture. A He-Ar mixture is simulated at different Kn^{ref} , and the molecular characteristics of the different species can be found in table 5.1. The pressure ratio is set to $\mathcal{R}_p = p_{\text{in}}/p_{\text{out}} \simeq 3$, and the inlet and outlet molar fractions of Helium are identical ($\chi_{\text{in}}^{\text{He}} = \chi_{\text{out}}^{\text{He}} = 0.501$) to match the reference solution based on the McCormack kinetic model [8]. The same test case has also been investigated with the r-BMM for model verification [7, 131], allowing for model comparison within the LB framework.

Table 5.2 shows the different “reference” Kn reported in previous works for the exact same simulation at an outlet pressure $p_{\text{out}} = 15$ kPa for the “high” pressure and $p_{\text{out}} = 2$ kPa for the “low” pressure simulations. Experimental work [146] computed Kn^{ref} with the mean pressure, mixture transport properties, and by taking the hydraulic diameter as the characteristic length, whereas the r-BMM [7] respectively uses the outlet pressure, mixture transport

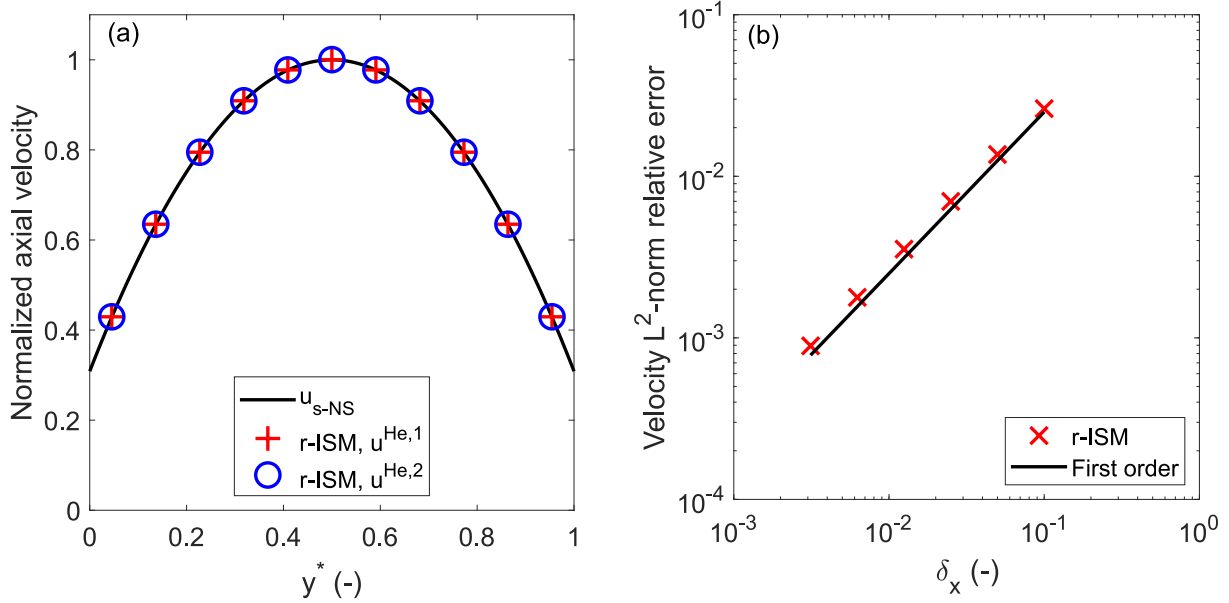


Figure 5.2 Normalized axial velocity profile at the outlet (a) and velocity L^2 -norm relative error against spatial step δ_x (b) for a pure He microchannel flow at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.1$.

properties and the height of the microchannel as the characteristic length. The different values of Kn^{ref} show that this parameter must be appropriately set as it may strongly affect the LB algorithm. To achieve comparable numerical results, the real parameters from the experimental study [3] are used to recover Kn^{ref} .

In a similar fashion to the r-BMM numerical modeling [7], a preliminary analysis was performed so that the numerical results shown in figures 5.3 and 5.4 are independent of the mesh refinement and the L/H ratio. Following the analysis, the space discretization was set to $n_x \times n_y = 1100 \times 21$ grid nodes. The wall function coefficient was set to $C_\psi = 1.1$ for both species to best fit the McCormack results [8]. Simulations at “high” and “low” pressure from table 5.2 with the r-ISM are performed by setting the outlet pressure so that $p_{\text{out}}^{\text{mix}} = \rho_{\text{out}}^{\text{mix}} c_s^2 = 1/3$ and rescaling the inlet pressure accordingly.

Table 5.2 Reference value of Kn (Kn^{ref}) for the He-Ar mixture simulation in various works.

Model	“High” pressure Kn^{ref}	“Low” pressure Kn^{ref}
Experimental [146]	0.09	0.71
McCormack kinetic model [8]	0.26	1.97
r-BMM [7]	0.46	3.52
r-ISM (present)	0.59	4.41

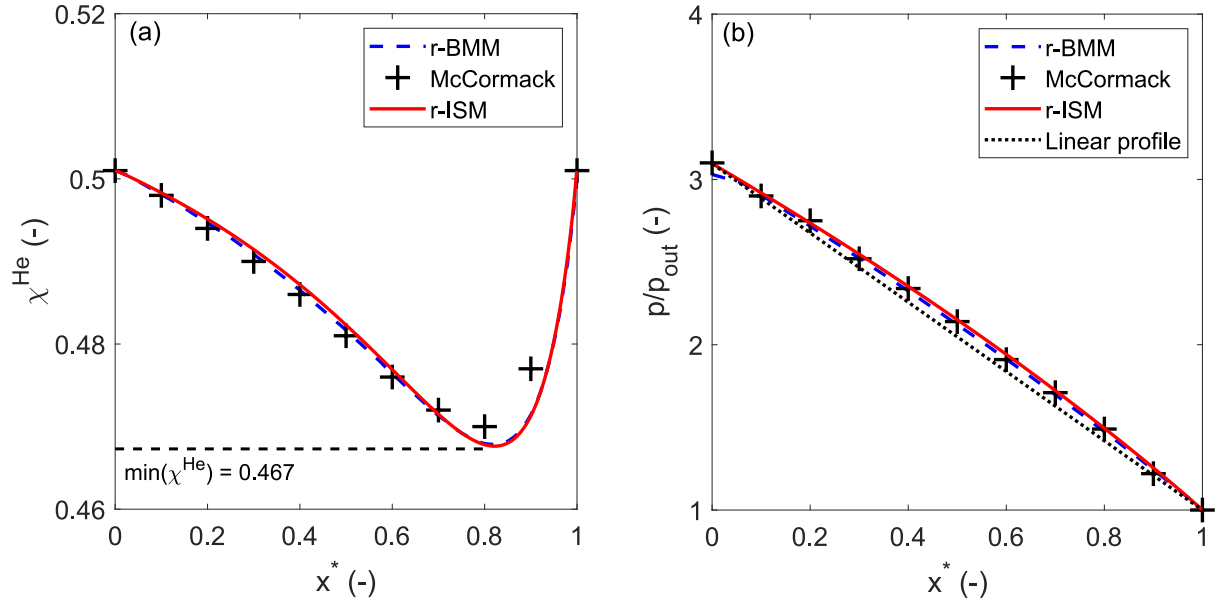


Figure 5.3 Molar fraction distribution of He (a) and normalized total pressure distribution (b) at the centerline for a He-Ar microchannel flow at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.59$. Dashed lines (--) and markers (+) respectively identify rarefied binary mixture (r-BMM) [7] and McCormack [8] numerical results.

At $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.59$, the distribution of He along the microchannel deviates in figure 5.3(a) from a constant value despite the same imposed molar fraction at the inlet and the outlet of the domain. A peak deviation is observed as the minimum of χ^{He} reaches 0.467. The large peak deviation at “low” Kn^{ref} may come from compressibility effects [8] as we look at the normalized total pressure distribution in figure 5.3(b). The large pressure ratio could be responsible for the non-linear total distribution and cause a non-uniform distribution of the different components along the microchannel.

At $\text{Kn}^{\text{ref}} = 4.41$, the peak deviation for the molar fraction distribution of He is lower as the minimum value of χ^{He} in figure 5.4(a) reaches 0.488, but the non-uniformity is more spread along the microchannel. However, this may not come from compressibility effects, as the normalized total pressure distribution shown in figure 5.4(b) in the domain is almost linear. Thus, the non-uniformity of the molar distribution at “low” pressure (or “high” Kn^{ref}) would rather come from the increasing difference between the species velocities.

Both LBM-based models provide numerical results with comparable accuracy relative to the McCormack kinetic model. With regard to this test case, we may assume that the r-ISM has equivalent numerical capabilities with the r-BMM. The next test case points out the advantages of the r-ISM by recovering the species velocity profiles, which cannot be obtained

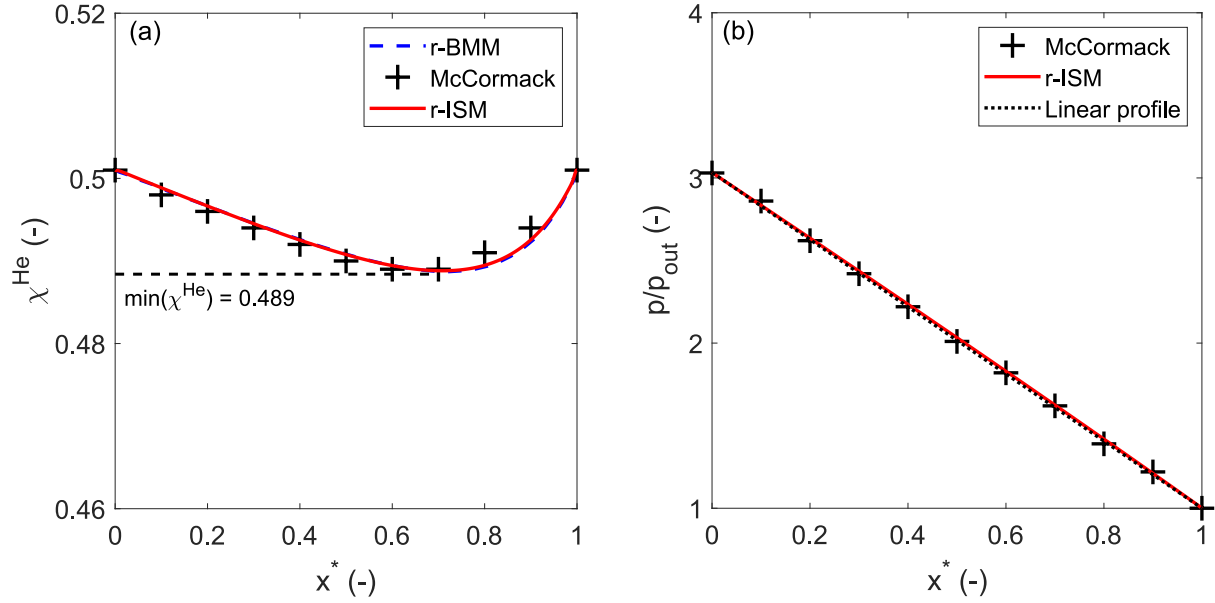


Figure 5.4 Molar fraction distribution of He (a) and normalized total pressure distribution (b) at the centerline for a He-Ar microchannel flow at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 4.41$. Dashed lines (--) and markers (+) respectively identify rarefied binary mixture (r-BMM) [7] and McCormack [8] numerical results.

with the r-BMM.

5.5.3 Species velocities in a rarefied binary mixture

After investigating the variations of mixture composition across the microchannel, we now attempt to capture the increasing velocity difference between the species with increasing Kn , typical of the gas separation phenomenon. Equimolar mixtures of Ne-Ar and He-Xe are simulated and compared to the McCormack kinetic modeling of the Boltzmann equation [9]. The species axial velocity u^k is written as a summation of the independent contributions from the different macroscopic gradients:

$$u^k = u_{(P)}^k \delta p + u_{(C)}^k \delta C + u_{(T)}^k \delta T, \quad (5.48)$$

where $u_{(P)}^k$, $u_{(C)}^k$ and $u_{(T)}^k$ are the partial species velocity respectively induced by pressure, concentration and temperature gradients. The non-dimensional pressure, concentration and temperature gradients are respectively identified in (5.48) by δp , δC and δT :

$$\delta p = \frac{H}{p_0} \nabla p, \quad \delta T = \frac{H}{T_0} \nabla T, \quad \delta C = \frac{H}{C_0} \nabla C, \quad (5.49)$$

where p_0 , T_0 and C_0 are the reference pressure, temperature and species concentration. We verify our model specifically through $u_{(P)}^k$, as it is the relevant term in pressure-driven flows. The simulation parameters for the two binary mixtures are as follows. A discretization of 80 nodes along the y -direction exhibits mesh independent results and we set $L/H = 50$. The different molecular characteristics are available in table 5.1. The pressure ratio is set to $\mathcal{R}_p = 1.01$, low enough to achieve negligible concentration gradients (see section 5.5.2) so that $u^k \simeq u_{(P)}^k \delta p$ (the flow being isothermal, we have $\delta T = 0$). The molar fractions of each component are imposed at the inlet and outlet of the domain through the partial pressures ($p_{\text{in}}^{\text{Ne}} = p_{\text{in}}^{\text{Ar}} = 0.5 p_{\text{in}}$, $p_{\text{out}}^{\text{Ne}} = p_{\text{out}}^{\text{Ar}} = 0.5 p_{\text{out}}$) with the Zou and He pressure boundary condition. The rarefaction rates follow Naris et al. [9], so that $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.12$ for the Ne-Ar mixture and $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.21$ for the He-Xe one and the wall function coefficients C_ψ were respectively set to 0.8 and 1.3 for the best fit with the reference data. Finally, the species velocity profiles displayed in figure 5.5 are non-dimensionalized as:

$$u^{k*} = u_{(P)}^{k*} = u_{(P)}^k \cdot \sqrt{\frac{2k_B T}{m^{\text{mix}}}} \delta p \quad (5.50)$$

where m^{mix} is the mean molecular mass: $m^{\text{mix}} = \sum_k \chi^k m^k$.

In addition to the McCormack kinetic model, the numerical results are also compared to the analytical species velocity profiles obtained by solving (5.9) with slip boundary conditions (details of the resolution are given in [10]).

Figure 5.5(a) exhibits the species velocity profiles for the Ne-Ar mixture at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.12$. All velocity profiles are almost identical, indicative of a homogeneous behavior for the mixture. This can be attributed to the low mass ratio between the species ($m^{\text{Ar}}/m^{\text{Ne}} \simeq 2$), as well as the relatively low rarefied regime, so that gas particle collisions are ruled by the mixture transport coefficients and exhibit the same behavior regardless of the species. From figure 5.5(a), the numerical results are in good agreement with both the analytical and the McCormack velocity profiles.

The heterogeneous behavior of gaseous mixtures in the rarefied regime becomes visible for the He-Xe mixture at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.21$ when looking at the species velocity profiles in figure 5.5(b). The gas separation phenomenon is more pronounced for mixtures with large mass ratios ($m^{\text{He}}/m^{\text{Xe}} \simeq 32$), and each species has an independent velocity profile, with the lightest species (He) as the fastest one. According to the r-ISM computations, He has a maximum velocity at the centerline of the microchannel 14% higher than Xe.

Unlike the Ne-Ar mixture, notable deviation is observed between the current LBM model and the McCormack results. This discrepancy could rise from the use of the rigid-sphere model to

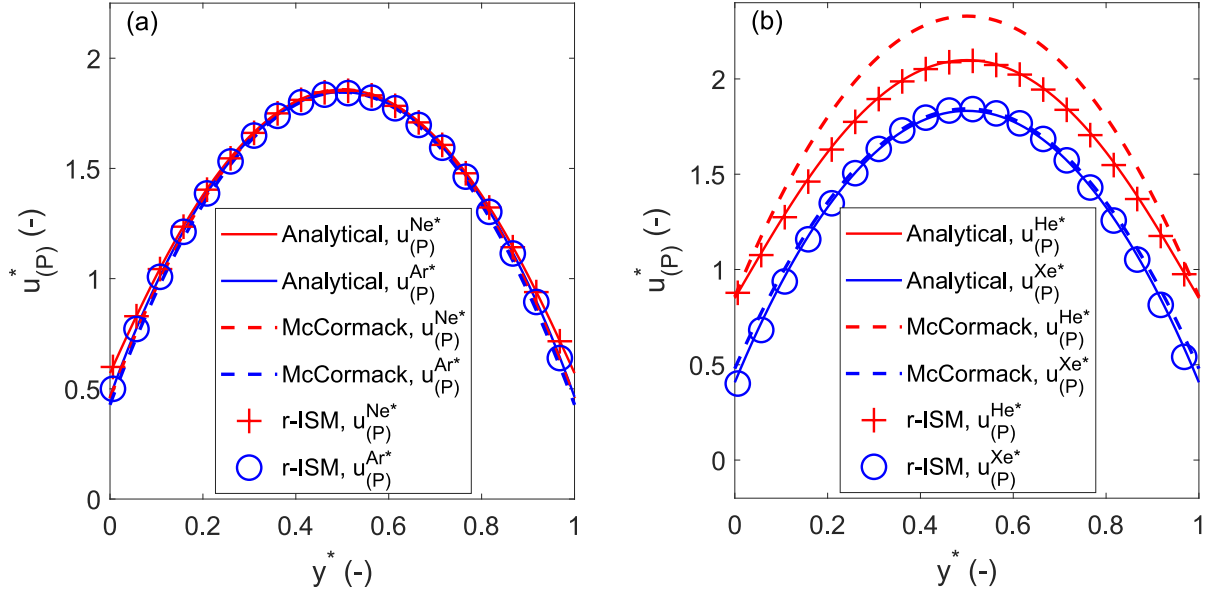


Figure 5.5 Normalized axial velocity profiles at the centerline in a microchannel flow for an equimolar Ne-Ar at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.12$ (a) and an equimolar He-Xe at $\text{Kn}^{\text{ref}} = 0.21$ (b). Dashed lines and solid lines respectively identify the McCormack [9] numerical and the analytical [10] solutions.

compute transport coefficients: Ref. [9] states that a more realistic interaction potential has a greater effect on the velocity profiles of disparate mass mixtures (like He-Xe). Therefore, greater deviation is expected between the different kinetic models when simulating mixtures with large mass ratios. In addition, the resulting transport coefficients may also deviate and lead to different velocity profiles. Based on the observation from a previous work [203], separation between the species velocity profiles at large mass ratios increases with diffusion effects. The relative magnitude between diffusion and viscous effects is defined through the mixture Schmidt number Sc^{mix} :

$$\text{Sc}^{\text{mix}} = \frac{\eta^{\text{mix}}}{\rho^{\text{mix}} D^{kl}} \quad (5.51)$$

For the equimolar He-Xe mixture, the rigid-sphere model gives $\text{Sc}^{\text{mix}} = 0.22$ whereas its value decreases to 0.16 using a more realistic kinetic model based on the Lennard-Jones interaction potential [69, 140]. Therefore, with the current kinetic theory, the separation phenomenon is underestimated as it is shown in figure 5.5(b). Despite the visible deviation, the numerical results are still in good agreement with its analytical counterpart, showing that the r-ISM is able to recover the macroscopic equations in (5.9) it was built upon. In addition, one may also notice that the velocity error at the walls is acceptable between the models and shows that the approximation for the species velocity slip coefficient is satisfactory to describe the species

flow behavior at the vicinity of the walls. One must also acknowledge the different values of C_ψ in sections 5.5.2 and 5.5.3, highlighting the empirical aspect of the wall function approach for mixtures rather than a constant value. These results could not have been predicted by the r-BMM, since the species velocities computed with the latter model are unrelated to mixture dynamics [129]. Therefore, the information provided by the r-ISM allows for additional analysis of the species flow rate, which will be treated in the next subsection.

5.5.4 Influence of mixture composition on rarefied gas mixture flows

A parametric study is now performed to look at the volumetric flow rates for gaseous binary mixtures of different compositions as Kn^{ref} increases. The analysis is motivated by the applications (Knudsen pumps, micromixers) which benefit from the gas separation phenomenon [23,213], and whose performance yield is generally measured in terms of volumetric flow rate.

Influence of the molar fraction

We first look at the influence of the molar fraction of a given binary mixture. The molar fraction of He χ^{He} within an He-Ar mixture is studied. Except χ^{He} , the simulation parameters are identical as in section 5.5.3. The species and mixture volumetric flow rates Q^k and Q^{mix} are obtained by integrating the axial species and mixture velocities u^k and u^{mix} over the cross-section at $x^* = x/L = 0.5$:

$$Q^k = \int_0^H u^k(y) dy, \quad (5.52)$$

$$Q^{\text{mix}} = \int_0^H u^{\text{mix}}(y) dy. \quad (5.53)$$

Finally, we define the non-dimensional volumetric flow rates:

$$Q^{k*} = Q^k/Q_0, \quad (5.54)$$

$$Q^{\text{mix}*} = Q^{\text{mix}}/Q_0, \quad (5.55)$$

with Q_0 the volumetric flow rate in the continuum regime:

$$Q_0 = \frac{H^3 \Delta p}{12 \eta^{\text{mix}} L}. \quad (5.56)$$

The simulations are performed for Kn^{ref} ranging from 0.001 (continuum regime) to 1 (transition regime). One must carefully handle the different definitions of the Knudsen number. As

any dimensionless number, the chosen parameters to compute it may modify its value, like in section 5.5.2. Also, one must differentiate the Knudsen number of a k -component Kn^k to its effective value Kn_{eff}^k . The first number is computed with (5.20), *ie.* the k -component mean free path divided by a given length H , whereas the second one obtained with (5.35) takes the bounded system into account in the calculation of the mean free path, which becomes then *effective*, before being divided by the same characteristic length. Thus, the two numbers would be equal in an unbounded system. Therefore, even though we set the value of Kn^{ref} in the numerical simulations, its effective value used in the different steps of the r-ISM is based on (5.35). Finally, the choice of the wall function coefficient C_ψ did not alter the subsequent figures nor the concluding remarks (see Appendix C for a detailed explanation); therefore, it is arbitrarily set to 1.

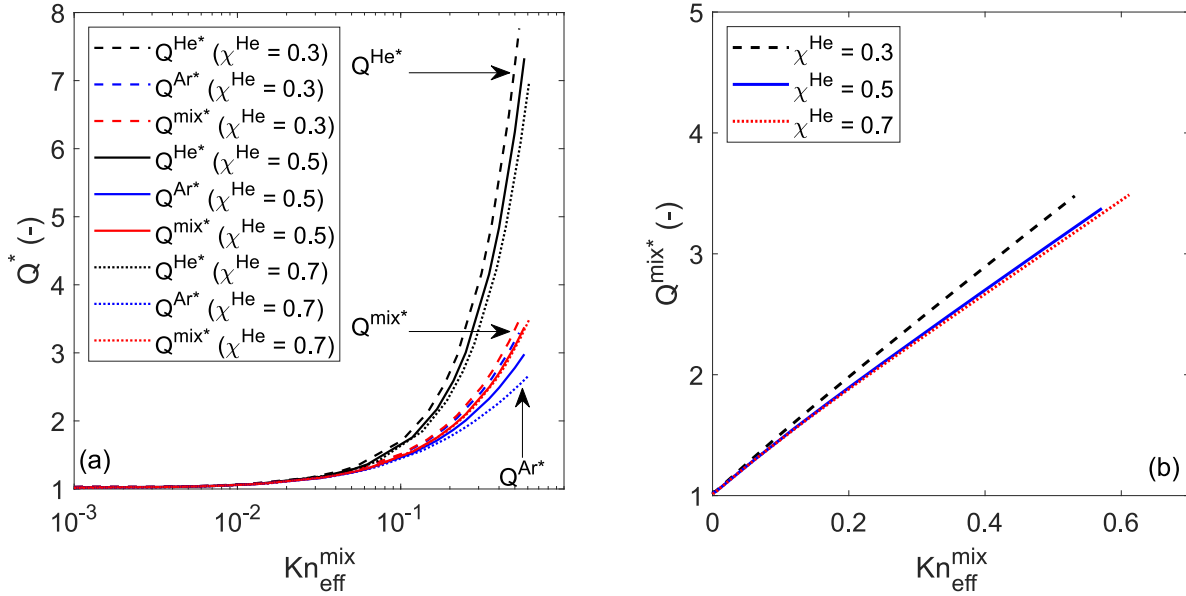


Figure 5.6 Semi-log scale non-dimensional (a) and linear scale non-dimensional mixture (b) volumetric flow rates for an He-Ar microchannel flow at different molar fractions of He and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$.

The variation of the non-dimensional volumetric flow rates are plotted against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ (related to Kn^{ref} with (5.35)-(5.36) in figure 5.6. In figure 5.6(a), Q^{k^*} and Q^{mix^*} seem identical and close to unity for low values of $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$. A deviation appears at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.1$, where Q^{He^*} is visibly higher than Q^{mix^*} . This observation is valid regardless of χ^{He} and also appears with increasing $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for Q^{Ar^*} , which is gradually lower than Q^{mix^*} . At $\chi^{\text{He}} = 0.5$, the maximum deviation is reached at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.6$ (equivalent to $\text{Kn}^{\text{ref}} = 1$), with $Q^{\text{He}^*} = 7.33$, $Q^{\text{Ar}^*} = 2.98$ and $Q^{\text{mix}^*} = 3.37$. This is qualitatively in agreement with the velocity profiles

shown in section 5.5.3 for the He-Xe mixture, where the lighter species has a higher velocity magnitude. In figure 5.6(b), we notice that the mixture non-dimensional volumetric flow rate $Q^{\text{mix}*}$ slightly decreases with increasing χ^{He} , showing that rarefaction has a smaller impact on heavier mixtures. However, the rate of increase of $Q^{\text{mix}*}$ with χ^{He} remains negligible compared to the rate of increase with $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$.

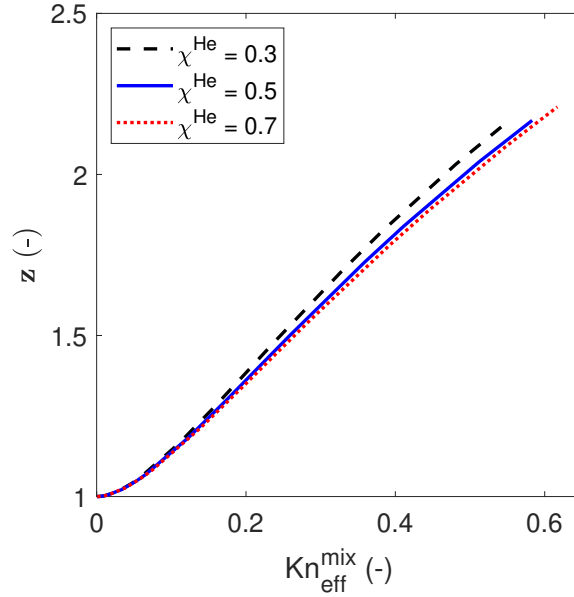


Figure 5.7 Rarefaction parameter z against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for different molar fractions of He for an He-Ar microchannel flow.

The magnitude of the gas separation phenomenon is discussed by introducing the rarefaction parameter z [70]:

$$z = \frac{Q^{\text{ref}}}{Q^k} \frac{(1 - \chi^{\text{ref}})}{\chi^{\text{ref}}}. \quad (5.57)$$

Here, Q^k relates to the heavier species (Ar for the He-Ar mixture) and Q^{ref} relates to the reference (lighter) species (He for the He-Ar mixture). The variations of z with $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ and χ^{He} are displayed in figure 5.7. The value of z remains constant at unity at low $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$, indicating that both species have similar volumetric flow rates and that there is no visible velocity difference between the species. We define the gas separation phenomenon to be relevant when z reaches 1.05: it means that the volumetric flow rate of the lighter species is 5% higher than the heavier one. With this threshold, the gas separation phenomenon begins at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.06$ and its value increases to 2.5 at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.6$ for all χ^{He} . The rate of increase of z with χ^{He} is similar for all molar fractions of He, showing that it has a negligible influence on the gas separation phenomenon compared to $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$.

Influence of the species

The gas separation phenomenon exists in rarefied regimes because of the molecular mass difference between the species [214]. Therefore, we simulate mixtures with different species with a focus on the molecular mass ratio \mathcal{R}_m . Four equimolar mixtures are considered (Ne-Ar, He-Ar, He-Kr and He-Xe) with increasing values of \mathcal{R}_m (2, 10, 20 and 32, respectively). The molecular properties of the different species in the mixtures are listed in table 5.1. The range of Kn_{ref} simulated and the wall function coefficient C_ψ are the same as in section 5.5.4. Simulation results are displayed in figure 5.8.

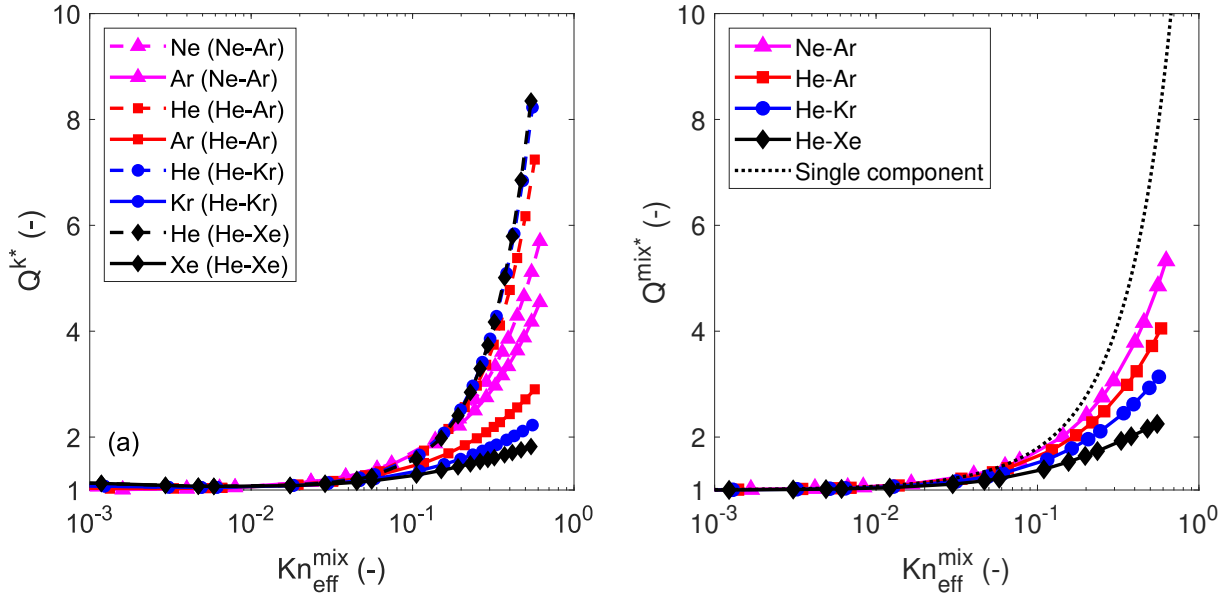


Figure 5.8 Non-dimensional species (a) and mixture (b) volumetric flow rates for different microchannel mixture flows at different $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$.

All mixtures exhibit a similar behavior with increasing $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ in figure 5.8: the non-dimensional species volumetric flow rates increase with $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$, and the values of Q^{k*} deviate between the species, from $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.1$ for the He-Xe mixture to $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.3$ for the Ne-Ar mixture. When $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ increases beyond these values, the lighter species (Ne or He) consistently has the higher non-dimensional volumetric flow rate. Also, the higher the molecular mass ratio \mathcal{R}_m is, the higher the non-dimensional volumetric flow rate of the lighter species is: at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.6$, Q^{He^*} reaches 8.3 for the He-Xe mixture ($\mathcal{R}_m = 32$) but 7.2 for the He-Ar mixture ($\mathcal{R}_m = 10$). The opposite trend is observed for the heavier species.

For the mixture non-dimensional volumetric flow rate in figure 5.8, the rate of increase of Q^{mix^*} decreases with \mathcal{R}_m : the maximum of Q^{mix^*} reaches 4.9 at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.6$ for the Ne-Ar

mixture ($\mathcal{R}_m = 2$) but only 2.0 for the He-Xe one ($\mathcal{R}_m = 32$). The correlation [10] for a single component (He is used here) non-dimensional volumetric flow rate is also displayed in figure 5.8. Numerical results are in good agreement with the single component plot as long as the species non-dimensional volumetric flow rates do not deviate from each other. When deviation appears for the species non-dimensional volumetric flow rates, numerical results no longer follow the single component correlation. For instance, at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} = 0.1$, $Q^{\text{mix}*}$ is around 30 % lower than the single component prediction for the He-Xe mixture, and this trend amplifies with increasing $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$. The Ne-Ar mixture, whose molecular mass ratio is the closest to unity, has also the closest rate of increase to the single component correlation. Within the scope of this work, the approximation of a homogeneous behavior for a binary mixture advocated by the r-BMM seems valid at relatively low $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ and/or low molecular mass ratio. At highly rarefied flow regimes or at high molecular mass ratio, the increasing deviation between the species behavior with each other and with the mixture must be taken into account by treating them individually as in the r-ISM.

The difference in molecular mass between species within a mixture has a great influence on the gas separation phenomenon as shown by the rarefaction parameter z in figure 5.9. Indeed, the separation phenomenon emerges at a low $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ when \mathcal{R}_m is significant. With the threshold value of 1.05, the separation phenomenon becomes non-negligible at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.2$ for the Ne-Ar mixture, but exists at an earlier rarefied state for the He-Xe mixture, at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.05$. Also, the rate of increase of z with $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ is also higher at high \mathcal{R}_m : at $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 0.6$, z ranges from 1.2 for the lowest molecular mass ratio (Ne-Ar) to 4.6 for the highest one (He-Xe).

The mixtures behavior are finally qualitatively compared to the ones computed through DSMC simulations [11] in short microchannels ($L/H = 1$). Figure 5.10 compares the rarefaction parameter z for He-Ar, He-Kr and He-Xe equimolar mixtures. The value of z gradually increases for all mixtures starting from the transition flow regime ($\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} > 0.1$), and the mixture with the lowest \mathcal{R}_m has the lowest value of z . We observe good agreement with the reference results regarding the rate of increase of z with the rarefaction rate. The present simulations also respect the limit behavior [11, 70] in the molecular free regime, plotted in figure 5.10 and defined as:

$$z_{\text{lim}} = \frac{(1 - \chi^{\text{ref}})}{\chi^{\text{ref}}} \sqrt{\frac{m^k}{m^{\text{ref}}}}, \quad (5.58)$$

where m^k relates to the heavier species molecular mass. The r-ISM results fall well within this limiting regime with respect to the different mixtures as z approaches z_{lim} as slip and early transition regimes are simulated without exceeding it.

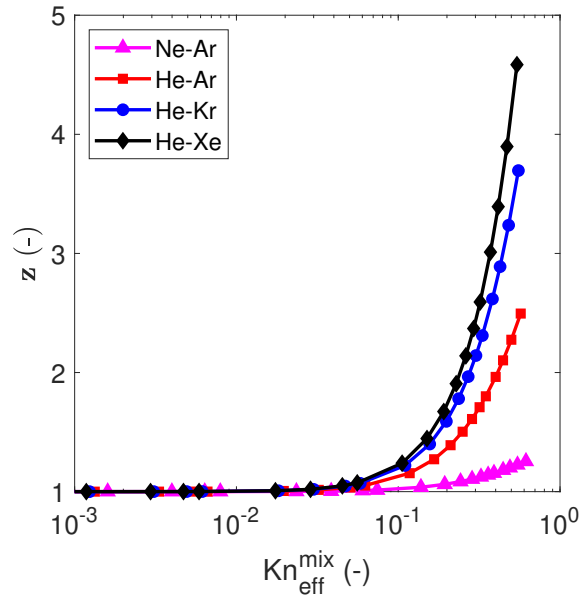


Figure 5.9 Rarefaction parameter z against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for different microchannel mixture flows.

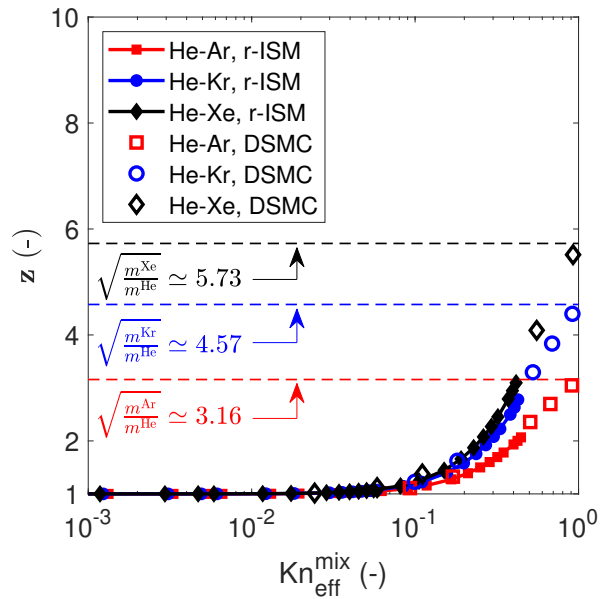


Figure 5.10 Rarefaction parameter z against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ for different mixture flows in a short microchannel ($L/H = 1$). Open markers identify Direct Simulation Monte Carlo numerical results [11].

Numerical results displayed in this section are not affected by the empirical coefficient C_ψ , as described in Appendix C. However, one would have to recover the correct value for an

accurate description of the mixture flow. The coefficient C_ψ also varied among the different simulated mixtures (see sections 5.5.2 and 5.5.3). Thus, C_ψ could be dependent on mixture properties, or even different between the species. Despite the uncertainty of its expression, this approach was needed for model verification, especially in the transition flow regime. However, the simple hypothesis of an identical expression for both species already exhibits good capabilities of the r-ISM to simulate gaseous mixtures in an individual manner to retrieve species macroscopic quantities.

5.6 Conclusion

A lattice Boltzmann model for miscible mixtures has been extended to the rarefied regimes. The components of the mixture are individually treated and coupled through a diffusion-related body force. Self and cross-collision frequencies between fluid particles define a Knudsen number, used to express fluid viscosity and binary diffusion coefficients by means of the kinetic theory of gases with the rigid-sphere model. The MRT collision operator and CBBSR boundary conditions are privileged to obtain a slip velocity at solid walls consistent with the Maxwell first-order slip model. A Bosanquet-type wall function is implemented to extend simulations to high rarefied regimes, and is adapted to gaseous under specific assumptions.

The model is verified through different test cases against analytical and numerical solutions in a 2D plane microchannel. Numerical results show the ability to recover the species partial density and velocity profiles within a mixture in rarefied regimes, despite the approximation for the species velocity slip coefficient. The additional analysis highlights the influence of mixture composition and rarefaction rate on the species and mixture volumetric flow rate. Although the molar distribution of a given mixture has little effect on the volumetric flow rate, the gas separation phenomenon appears at an earlier rarefied regime and has a greater magnitude with increasing molecular mass ratio. Comparison with the single component model points out the requirement of a multicomponent model for miscible mixtures in rarefied regimes.

Despite the limits of the current model at highly rarefied regimes and the presence of an empirical parameter, the gas separation phenomenon is still qualitatively well captured by the r-ISM. The modeling issues that have been raised in this work could be overcome by implementing wall functions based on the local geometry to assess the actual characteristic length of complex geometries. Thus, future work aims at implementing this type of wall function to compute the individual species flow paths in heterogeneous micro-porous media and study the species individual behavior in those microstructures.

Acknowledgements

This research was supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada through a grant from the Collaborative Research and Training Experience (CREATE-481695-2016) program in Simulation-based Engineering Science (Génie Par la Simulation).

Appendix A : Mean free path in gaseous mixtures

The starting point for a k -component mean free path within a mixture is the calculation of its average molecular speed \bar{v}_{ave}^k from the Maxwell molecular speed distribution [28]:

$$\bar{v}_{\text{ave}}^k = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m^k}}. \quad (5.59)$$

For collisions between k - and l - particles with respect to the rigid-sphere model, the collision frequency writes as:

$$z^{kl} = \frac{p^l}{k_B T} \pi (d^{kl})^2 \bar{v}_{\text{ave}}^{kl}, \quad (5.60)$$

with d^{kl} defined by (5.18). The mixture average molecular speed $\bar{v}_{\text{ave}}^{kl}$ is defined as:

$$\bar{v}_{\text{ave}}^{kl} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m^{kl}}}, \quad (5.61)$$

with the reduced molecular mass m^{kl} given by (5.19). Collisions between particles of the same species have a slightly different collision frequency expression to avoid collisions being counted twice for a given species [28]:

$$z^{kk} = \sqrt{2} \frac{p^k}{k_B T} \pi (d^k)^2 \bar{v}_{\text{ave}}^k. \quad (5.62)$$

With (5.59)-(5.62), (5.15)-(5.20) are recovered, so that fluid viscosity and binary diffusion coefficients are expressed as a function of thermodynamic properties and molecular characteristics.

Appendix B : Slip velocity coefficients for binary mixtures

Following other multicomponent flow modeling in the rarefied regime with the LBM [7, 130, 131], the calculation of the velocity slip coefficient C_1^{mix} of a k - l binary mixture ($N = 2$)

follows the work of Ivchenko et al. [12]:

$$C_1^{\text{mix}} = \frac{p\sqrt{\mathcal{R}_{\mathcal{M}}}}{\eta^{\text{mix}}} \frac{5\pi}{8} \left[(2 - \alpha^k)\chi^k b^k \left(K_1 + \frac{4b^k}{\pi\sqrt{\mathcal{R}_{\mathcal{M}k}}} K_2 \right) + (2 - \alpha^l)\chi^l b^l \left(K_1 + \frac{4b^l}{\pi\sqrt{\mathcal{R}_{\mathcal{M}l}}} K_2 \right) \right], \quad (5.63)$$

where α^k and α^l are respectively the k - and the l - tangential momentum accommodation coefficient (TMAC) for the gas-solid interaction. The value of TMAC has been experimentally measured against various wall geometries and fluctuates between 0.85 and 1 [38, 46, 215, 216]. In this present work, we set $\alpha^k = \alpha^l = 1$ based on previous LBM simulations [7, 77, 130, 131, 157] regardless of the species, mixture composition, or Knudsen number.

The molecular ratios $\mathcal{R}_{\mathcal{M}k}$, $\mathcal{R}_{\mathcal{M}l}$ and $\mathcal{R}_{\mathcal{M}}$ in (5.63) are given by:

$$\begin{aligned} \mathcal{R}_{\mathcal{M}k} &= \frac{m^k}{m^k + m^l}, \\ \mathcal{R}_{\mathcal{M}l} &= \frac{m^k}{m^k + m^l}, \\ \mathcal{R}_{\mathcal{M}} &= \frac{\chi^k m^k + \chi^l m^l}{m^k + m^l}. \end{aligned} \quad (5.64)$$

The coefficients b^k and b^l are obtained with the following equations:

$$\begin{aligned} b^k &= \frac{\chi^k R^k + \chi^l T^l}{p [(\chi^k \chi^k R^k) / \eta^k + (\chi^l \chi^l R^l) / \eta^l + \chi^k \chi^l R^{kl}]}, \\ b^l &= \frac{\chi^l R^l + \chi^k T^k}{p [(\chi^k \chi^k R^k) / \eta^k + (\chi^l \chi^l R^l) / \eta^l + \chi^k \chi^l R^{kl}]}, \end{aligned} \quad (5.65)$$

and the coefficients K_1 and K_2 are given as:

$$\begin{aligned} K_1 &= \frac{(2 - \alpha^k)\chi^k b^k + (2 - \alpha^l)\chi^l b^l}{\alpha^k \chi^k \sqrt{\mathcal{R}_{\mathcal{M}k}} + \alpha^l \chi^l \sqrt{\mathcal{R}_{\mathcal{M}l}}}, \\ K_2 &= \frac{p}{4\eta^{\text{mix}}}. \end{aligned} \quad (5.66)$$

The remaining required parameters to compute C_1^{mix} for the binary mixture follow Ref. [130]:

$$\begin{aligned}
E &= \sqrt{\frac{2k_B T(m^k + m^l)}{\pi \mathcal{R}_{\mathcal{M}k} \mathcal{R}_{\mathcal{M}l}}} \frac{1}{(d^{kl})^2}, \\
R^k &= \frac{2}{3} + \frac{2}{5} \frac{m^k}{m^l}, \\
R^l &= \frac{2}{3} + \frac{2}{5} \frac{m^l}{m^k}, \\
R^{kl} &= \frac{E}{2\eta^k \eta^l} + \frac{8}{15E} \frac{1}{\mathcal{R}_{\mathcal{M}k} \mathcal{R}_{\mathcal{M}l}}, \\
T^k &= \frac{E}{2\eta^k} + \frac{2}{3} - \frac{2}{5}, \\
T^l &= \frac{E}{2\eta^l} + \frac{2}{3} - \frac{2}{5}.
\end{aligned} \tag{5.67}$$

For model consistency throughout the entire LB algorithm, the mixture dynamic viscosity η^{mix} is computed with help of (5.26) rather than the more realistic derivation of Chapman *et al.* in the initial modeling [12].

Figure 5.11 displays the calculated velocity slip coefficients with (5.63) for He-Ar and He-H₂ mixtures against the molar fraction of He. The molecular properties of the different components are available in Table 5.1. Although the results show a good agreement with the linearized Boltzmann calculations for He-Ar, a little deviation is observed C_1^{mix} for He-H₂ because of the different expressions. However, the variation of C_1^{mix} with χ^{He} and its magnitude are still in good agreement with the reference data.

Appendix C : Discussion of the simulation parameters C_ψ and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$

Numerical simulations in section 5.5.4 have been performed by arbitrarily setting $C_\psi = 1$. However, the different test cases in sections 5.5.2 and 5.5.3 suggest that C_ψ should be set to recover the correct velocity magnitude. Without it, the computed non-dimensional volumetric flow rates could either be underestimated or overestimated, and potentially lead to the wrong conclusions.

To assess the influence of C_ψ on the numerical results, non-dimensional volumetric flow rates for an equimolar He-Ar mixture is plotted against Kn^{ref} in figure 5.12(a). A low value of C_ψ indicates a smaller correction from $\psi(\text{Kn})$, i.e. the mean free paths are less affected by the presence of solid walls. Gas particles are allowed to flow more freely, and result in a higher non-dimensional flow rate with Kn^{ref} . In the figure, it translates into a higher rate of increase of $Q^{\text{mix}*}$ with Kn^{ref} for a smaller value of C_ψ . Therefore, different conclusions could be drawn

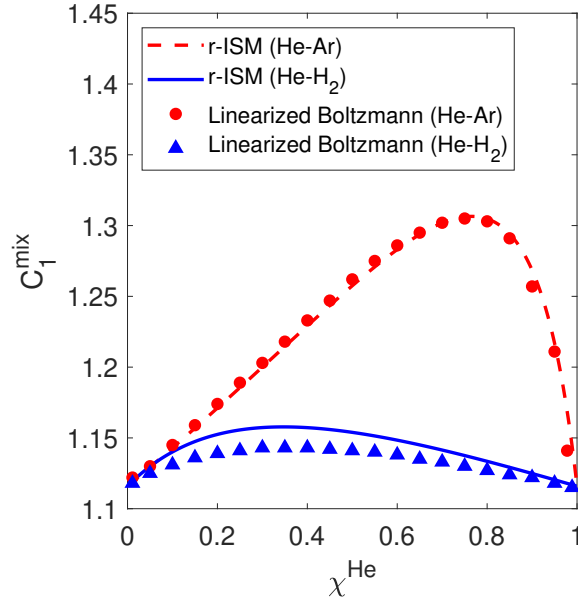


Figure 5.11 Mixture velocity slip coefficient C_1^{mix} against the molar fraction of He in He-Ar and He-H₂ mixtures. Markers identify the linearized Boltzmann results [12]

depending on the value of C_ψ . By displaying the results against $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ in figure 5.12(b), we can see that the results become independent of C_ψ , as all non-dimensional volumetric flow rates reduce to one single curve per species/mixture. This is caused by the inclusion of the wall function effect directly in $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ by combining (5.16), (5.17), (5.20), (5.23) and (5.35). Therefore, even though the value chosen for C_ψ deviates from the best value to fit the velocity profiles, the mismatch is taken into account in the plots through $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$. Thus, all results shown in section 5.5.4 are plotted as a function of $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$, and the concluding remarks remain valid.

The choice of $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ as a display parameter also causes the numerical results to be displayed without exceeding $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}} \simeq 1$. Indeed, the definition of $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ in (5.36) takes the presence of solid walls into account. Therefore, no matter how large the mean free path of a gas particle is, its effective value will always be limited by the characteristic length of the geometry in which it flows. The difference in the definitions of Kn^{mix} and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ is illustrated in figure 5.13 for an equimolar He-Ar mixture under atmospheric conditions. Without considering the geometrical effects, Kn^{mix} consistently increases with Kn^{ref} , whereas $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ is bounded and reaches a limit value.

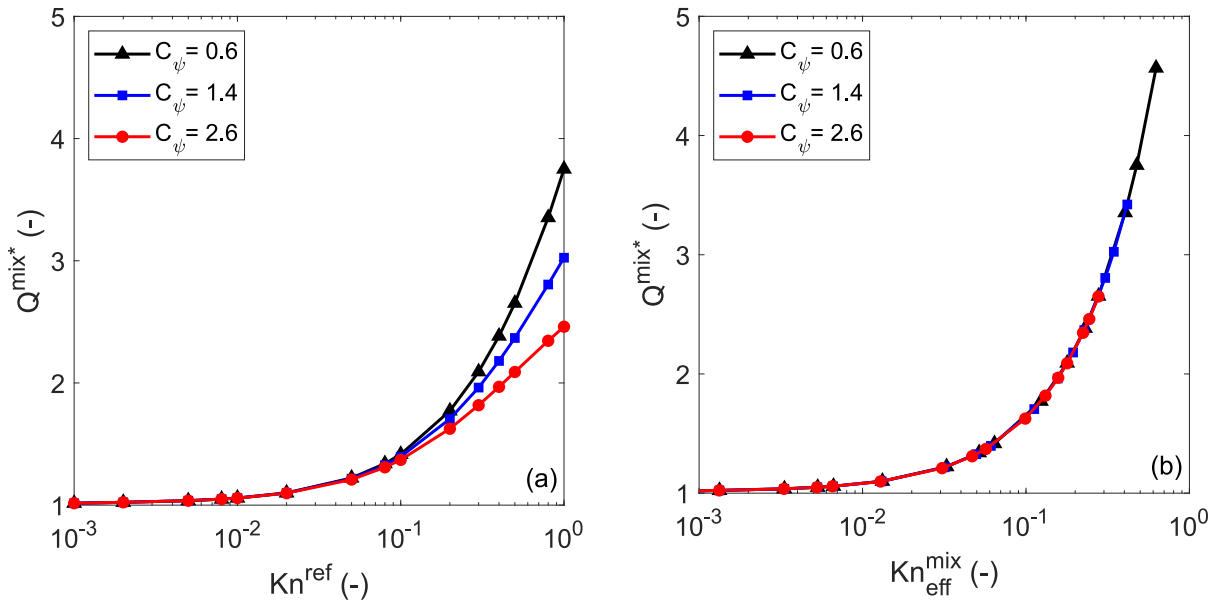


Figure 5.12 Non-dimensional mixture volumetric flow rate $Q^{\text{mix}*}$ at different C_{ψ} for an He-Ar equimolar mixture against Kn^{ref} (a) and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ (b).

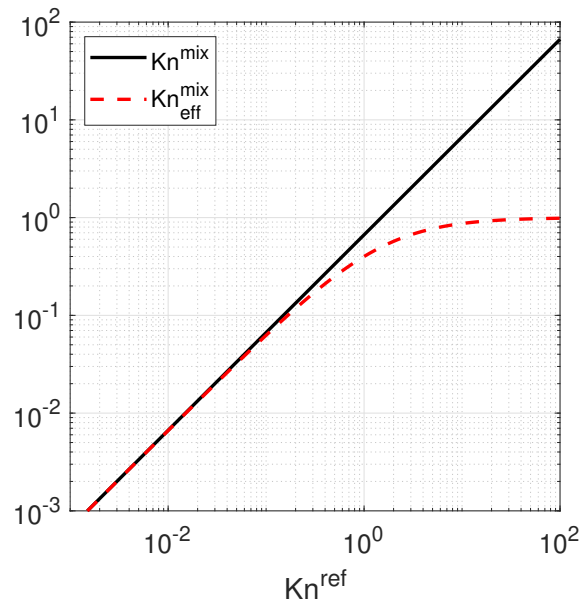


Figure 5.13 Kn^{mix} (5.36) and $\text{Kn}_{\text{eff}}^{\text{mix}}$ (5.23) against Kn^{ref}

CHAPITRE 6 ARTICLE 3 : LATTICE BOLTZMANN MODEL FOR RAREFIED GASEOUS MIXTURE FLOWS IN THREE-DIMENSIONAL POROUS MEDIA INCLUDING KNUDSEN DIFFUSION

Michel Ho, Jean-Michel Tucny, Sami Ammar, Sébastien Leclaire, Marcelo Reggio and Jean-Yves Trépanier - soumis le 16 mai 2022 dans *Physical Review Fluids* (Note : le texte présenté ici peut ne pas correspondre à la version finale).

6.1 Abstract

Numerical modeling of gas flows in rarefied regimes is crucial in understanding fluid behavior in microscale applications. Rarefied regimes are characterized by the decrease in molecular collisions, and lead to increased mass flow compared to the one predicted by the hydrodynamic equations. When simulating real gas flows, miscible mixtures should be considered, and unusual phenomena such as gas phase separation must be properly addressed. In this work, numerical investigation of miscible mixtures in the rarefied regime is performed through a modified lattice Boltzmann model. Slip boundary conditions are adapted to arbitrary geometries. A wall function based on a ray-tracing algorithm is implemented to model the non-equilibrium effects in the transition flow regime. The molecular free flow defined by the Knudsen diffusion coefficient is integrated through an effective and asymmetrical binary diffusion coefficient. The numerical model is validated with mass flow measurements through microchannels of different cross-section shapes from the near-continuum to the transition regimes and gas phase separation is studied in a simple porous medium built by arranging spheres in a staggered fashion. The influence of porosity and mixture composition on the gas separation effect are analyzed. Numerical results highlight the increase in the degree of gas phase separation with the rarefaction rate and the molecular mass ratio. The various simulations also indicate the impact of geometrical features in porous media at highly rarefied regimes for mixture flows.

Keywords : Lattice Boltzmann, Gaseous mixtures, Knudsen diffusion, Apparent permeability

6.2 Introduction

Interest in small-scale fluid modeling has grown in the past decades with the development of microelectromechanical systems (MEMS) with a wide range of applications in various domains [16, 18–24, 217]. Studying fluid flow at microscopic scale is also of great interest in

unconventional shale gas reservoirs [25, 26, 57] or in porous heat shields for the aerospace industry [33, 34, 184, 218, 219]. However, the classical Navier-Stokes equations and its underlying assumptions break down at this scale [29], and are unable to correctly predict the fluid flow behavior. Discrete effects become no longer negligible and have an impact at the macroscopic scale. Among them, one can report non-zero fluid velocity at the vicinity of solid walls [5, 6], and underestimation of the mass flow rate with the hydrodynamic equations compared to the experimental observations [41, 49]. The invalidity of the continuum hypothesis occurs when the mean free path λ defining the mean distance traveled by a gas particle between two consecutive collisions approaches the characteristic length H of the domain, generally defined by the surrounding obstacles. Rarefaction is usually characterized by the Knudsen number, which relates these two quantities [1]:

$$\text{Kn} = \lambda/H. \quad (6.1)$$

Flow regimes are generally classified according to the following ranges of the Knudsen number [1]: hydrodynamic (or continuum) regime for $\text{Kn} < 0.001$, slip flow regime for $0.001 \leq \text{Kn} < 0.1$, transition flow regime for $0.1 \leq \text{Kn} < 10$, and molecular free regime for $\text{Kn} \geq 10$.

Although extended Navier-Stokes equations can still be applied in the slip flow regime by capturing slip effects with a modified boundary condition [39, 220, 221], the non-equilibrium effects appearing at higher rarefied regimes require smaller scale representation of the fluid.

Thanks to its mesoscopic nature, the Boltzmann equation is able to recover the whole range of rarefaction [222], and is capable of modeling the discrete effects when Kn increases. Among the different kinetic models, the lattice Boltzmann method (LBM) has proven its capabilities in simulating fluid flows in the rarefied regime [86, 87, 93, 94, 105, 223, 224]. By solving a simplified and discrete form of the Boltzmann equation, the standard LBM model has been adapted to account for the rarefied regime. The Knudsen number has been introduced in the collision operator to account for the decrease in intermolecular collision frequency [85, 188, 225]. Besides, the convenient and linear BGK collision operator [79] has been replaced by the more stable multi-relaxation time (MRT) collision operator which allows additional tunable parameters to offset non-physical slip velocity [84, 87, 89, 94]. Slip boundary conditions have been implemented [82, 83] with respect to the LB discretization and tuned to match the macroscopic slip models and experimental measurements [87, 90, 190]. In the transition flow regime, the non-linearity between the shear stress and rate of deformation [6, 26, 29] because of local non-equilibrium effects has been modeled by introducing a wall function to obtain a local and effective value of the dynamic viscosity, either depending on the distance to the wall [100, 102], or a mean value by averaging the non-linearity over the cross-section of the

flow [7, 87, 94, 95].

A direct observation of the rarefied effects on fluid flow occurs in porous media, where the permeability value becomes no longer a constant value intrinsic to the porous media geometry properties, but a dynamic one depending on flow conditions. This particular behavior has been first observed by Klinkenberg while measuring mass flow through glass beads [66]. The measurements have shown that the permeability value of gases decreased with mean pressure. These observations led to the derivation of an apparent permeability expression, whose value is greater than the intrinsic permeability calculated in the hydrodynamic regime because of rarefied effects. Rarefied gas flow in porous media to compute apparent permeability has been extensively studied within the LB framework [89, 90, 104, 142, 143, 207, 226].

It is noteworthy that the vast majority of the studies mentioned above has been performed by considering a pure gas. However, gas phase contains more than one single component, and the presence of different components (and thus, different molecular mass and diameter) within the same phase modify the collisional behavior of the gas particles as interspecies collisions must be taken into account [123, 125]. The statement of a gaseous mixture being homogeneous remains valid in the hydrodynamic regime. It can thus be treated as a pure component with mixture transport properties, and simulating each component individually would add unnecessary degrees of freedom. This behavior is caused by the magnitude of the friction force in the hydrodynamic regime which is larger than the viscous shear force, so that homogenization among the mixture occurs first before being transported by the pressure gradient [10]. However, the mixture becomes gradually heterogeneous in the rarefied regime, as each component flows almost in an independent fashion because of the decrease in molecular collisions and thus momentum exchange [10]. At macroscopic scale, this leads to the separation of the gas phase, where each component follow a specific velocity. This phenomenon is particularly useful for micropumping [23] and porous microfiltration [16, 227] applications and must be adequately addressed in the numerical model. Specifically in porous media, the mixture composition influences the permeability enhancement factor [182, 206, 228].

Early work in single gas phase multicomponent modeling in the rarefied regime focused on pure diffusion problems. In absence of shear forces, the Maxwell-Stefan diffusion equations are extended to take Knudsen diffusion into account. This leads to the dusty gas model (DGM), where the additional Knudsen diffusion coefficient was treated through an effective diffusion coefficient [110]. Paradis *et al.* [229] explored rarefied effects on reaction-diffusion flows in porous media. Guo *et al.* [230] studied the impact of geometrical features in microporous media on gas effective diffusivity. Zheng *et al.* [231] applied a higher-order LBM model in

rarefied regimes to assess the impact of oxygen diffusion in porous catalyst layers. Another approach has been developed by Ma *et al.* [119] through an additional collision operator accounting for Knudsen diffusion, and has also been implemented to study reactive flows [232]. In the case of pressure-driven mixture flows, each component must be treated using active dynamics, i.e., the molar fraction of a given species is obtained by solving the species equation of conservation, since its concentration within the mixture has a direct impact on the mixture hydrodynamics. Using the active dynamics approach, Asinari *et al.* [129] have developed a LB model with a global collision operator related to both dynamic viscosity as binary diffusion within the hydrodynamic regime. The two transport mechanisms are decoupled within the operator by using a multiple relaxation time (MRT) form [81], which enable to tune both effects independently from each other and perform simulations at arbitrary Schmidt numbers. Unlike early approaches for pressure-driven mixture flows with binary diffusion [126,163,168], the indifferentiability principle is satisfied [128,129], i.e., the binary mixture model reduces to a single fluid one if both components are identical. The model has later been extended to the rarefied regimes by bringing the pure component adaptations to the gaseous mixture modeling [130]. The gas phase separation phenomenon has been investigated by looking at the deviation of the component concentrations compared to their hydrodynamic behavior [131]. From the different numerical simulations, gas phase separation phenomenon was mainly affected by the Knudsen number and the pressure ratio [7,131].

However, the phenomenon has not been assessed in terms of species flow rate: this is because the kinetic approach on which the LB model was built upon recovers the mixture macroscopic quantities, but not necessarily the species ones [128]. Therefore, it may not be a suitable approach when investigating the individual species behavior.

Recently, an alternative LB model for pressure-driven gaseous mixtures has been developed for rarefied regimes [233]. The theoretical basis builds upon the local equilibrium based on the species macroscopic quantities [132]. The local equilibrium accounts for self-collisions (related to dynamic viscosity), whereas the interspecies molecular collisions leading to binary diffusion are integrated in the LB algorithm as an external force, whose expression is based on the macroscopic Maxwell-Stefan diffusion equations [138]. The coupling between the species through an external force removes the limit of a binary mixture and simulating an arbitrary number of components is straightforward [138]. In the LB framework, it translates into N distribution functions for a N -component gaseous mixture, and the hydrodynamic equations for each individual species are recovered through a modified Chapman-Enskog analysis [132]. With appropriate adaptations to the rarefied regime, numerical results exhibit similar results to the binary mixture approach [7,233]. The individual modeling of each species within the

mixture also allows the gas phase separation phenomenon to be studied in terms of species mass flow ratio, showing that the degree of separation increases with molecular mass ratio and rarefaction rate. However, an empirical coefficient still remains for the wall function approach, because the reported data in the literature was only focused on pure component flows [7,95]. Also, Knudsen diffusion has not been considered within pressure-driven flows with binary diffusion. The increase in mass flow rate in the existing LB models is only attributed to slippage effects and the viscosity non-linear behavior within the Knudsen layer, but did not consider Knudsen diffusion for pressure-driven flows with binary diffusion. However, it greatly contributes to the global flow rate as the regime becomes more rarefied [228,234] and should be incorporated in the numerical model.

Yet for pure component flows, Knudsen diffusion has not been included when performing pressure-driven flows with the LBM. To the authors' knowledge, the few mentions in the literature compute pressure-driven flow in the hydrodynamic regime followed by pure rarefied diffusion flow through porous media to respectively compute the intrinsic permeability and effective diffusivity coefficient to estimate the apparent permeability value from the dusty gas model [104,235]. The main issue for pure component flows arises from the direct relationship between the self-diffusion coefficient and the dynamic viscosity with respect to the kinetic theory of gases [28,117]. Because the implemented adaptations for rarefied effects on the dynamic viscosity also affect self-diffusion, it may be complicated to dissociate the rarefied effects on viscous transport with diffusive transport and explicitly express the Knudsen diffusion in the LBM algorithm. Recently, a LB model developed by Zhao *et al.* [142] built upon a modified Boltzmann equation with an additional term to account for self-diffusion. The computed apparent permeability has shown good agreement with the different correlations for pure component flows up to the molecular free flow (up to $\text{Kn} \simeq 60$) where Knudsen diffusion is the dominant transport mechanism.

The present paper aims at extending the LB model developed using the individual species approach [233] to simulate mixture flows in the rarefied regime. The empirical aspect of the wall function because of multicomponent flows in the initial model is replaced with a deterministic way provided by a ray tracing algorithm [145,236]. As there is a clear decoupling between diffusive and viscous mechanisms in the case of mixture flows, Knudsen diffusion is taken into account in the external diffusion force by computing an effective binary diffusion coefficient. Slip boundary conditions for three-dimensional geometries are introduced. The rest of the paper is organized as follows. Section 6.3 details the numerical model for mixture flows in the rarefied regime with the latest modifications. Section 6.4 shows the numerical results for model validation. Numerical results are compared to experimental measurements of binary mixtures mass flow rates through long microchannels with trapezoidal and rectangu-

lar sections. Then, the species permeability enhancement factors are studied for a staggered arrangement of spheres. The influence of porosity, mixture composition, and rarefaction rate is investigated, and followed by a discussion. Section 6.5 draws general conclusions based on the numerical results obtained.

6.3 Description of the model

The present section extends a previous LB model for gaseous mixtures in the rarefied regime to three-dimensional domains. The different improvements made on the model are then discussed, including the implementation of a slip boundary condition, the use of a ray tracing algorithm for the effective calculation of the viscosity coefficient, and the inclusion of Knudsen diffusion in the multicomponent model.

6.3.1 Individual species based LB model for gaseous mixtures

Following the early development of an individual species based LB model for gaseous mixtures [138], the discrete Boltzmann equation formulation to describe the distribution function for a k -component fluid writes as:

$$f_i^k(\mathbf{x} + \boldsymbol{\xi}_i \delta t, t + \delta t) = f_i^k(\mathbf{x}, t) + \Omega^k(f_i^k) + \delta t S_i^k, \quad (6.2)$$

where f_i^k is the k -component discrete distribution function related to a discrete velocity vector $\boldsymbol{\xi}_i$ at a position \mathbf{x} . For three-dimensional simulations, the D3Q19 discretization scheme is used [237], and is given in Fig. 6.1. The velocity vector components are expressed in terms of the lattice speed $c = \delta x / \delta t$. In LBM simulations, the time and spatial steps δx and δt are usually unitary [7, 77], so that $c = 1$.

On the right-hand side of the equation, the collision operator Ω^k defines the k -component collision operator describing molecular collisions between particles of the same component. Gas flows in the rarefied regime are simulated; thus, the D3Q19 multi-relaxation time (D3Q19-MRT) operator is implemented and writes as [237, 238]:

$$\Omega^k(f_i^k) = - \sum_j (\mathcal{M}^{-1} \mathbf{S}^k \mathcal{M})_{ij} (f_j^k - f_j^{k,(\text{eq})}). \quad (6.3)$$

Because of the individual species based approach, there are as many MRT operators as components in the gaseous mixture. The transformation matrix \mathcal{M} projects the k -component distribution functions f_i^k into the k -moment space, so that $m_i^k = \sum_j \mathcal{M}_{ji} f_i^k$ and is given in

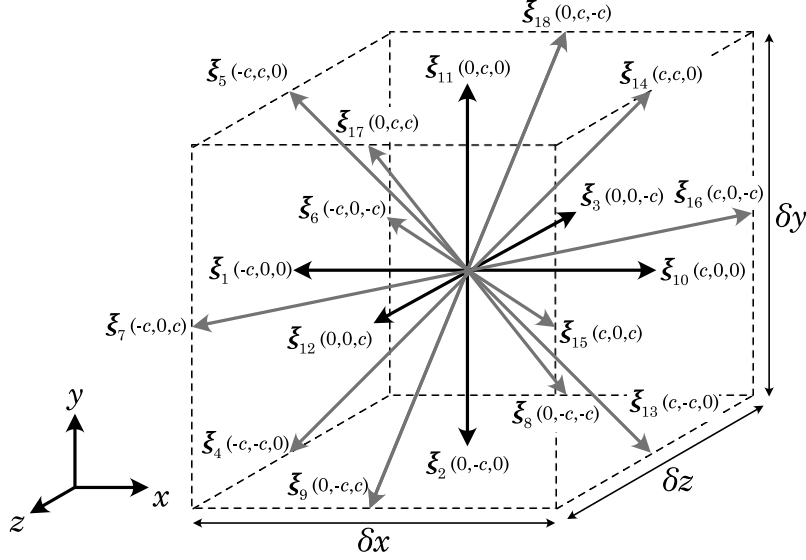


Figure 6.1 D3Q19 discretization scheme

Ref. [178]. The relaxation matrix \mathcal{S} is built as a diagonal matrix containing the different relaxation times:

$$\mathcal{S}^k = \text{diag} \left(\tau_\rho^k, \tau_e^k, \tau_\epsilon^k, \tau_j^k, \tau_q^k, \tau_j^k, \tau_q^k, \tau_j^k, \tau_q^k, \tau_s^k, \tau_\pi^k, \tau_s^k, \tau_\pi^k, \tau_s^k, \tau_s^k, \tau_m^k, \tau_m^k, \tau_m^k \right)^{-1}, \quad (6.4)$$

where each relaxation time is related to a physical quantity described by the different moments [239].

The MRT operator allows the different physical moments to relax independently with one another. Among the relevant relaxation times for rarefied gas simulations, the stress tensor-related relaxation time τ_s^k is related to the k -component partial kinematic viscosity ν^k as [7, 130, 233]:

$$\tau_s^k = 0.5 + \frac{\nu^k}{c_s^2 \delta t}, \quad (6.5)$$

where $c_s = c/\sqrt{3}$ is the LB speed of sound.

In addition, the energy flux-related relation time τ_q^k is adapted to offset numerical slip [86, 87, 94]:

$$\tau_q^k = \frac{8 - 1/\tau_s^k}{8(2 - 1/\tau_s^k)}. \quad (6.6)$$

The rest of the relaxation times are tunable free parameters and is taken from Ref. [178] for optimal stability.

Eq. (6.3) shows the relaxation of the discrete distribution functions f_i^k towards their equilib-

rium counterpart $f_i^{k,\text{eq}}$ calculated with the species macroscopic quantities [138]:

$$f_i^{k,\text{eq}} = \omega_i \rho^k \left[1 + \frac{\mathbf{u}^k \cdot \boldsymbol{\xi}_i}{c_s^2} + \frac{(\mathbf{u}^k \cdot \boldsymbol{\xi}_i)^2}{2c_s^4} - \frac{\mathbf{u}^k \cdot \mathbf{u}^k}{2c_s^2} \right]. \quad (6.7)$$

The weights ω_i in Eq. (6.7) are associated to the discrete velocities as [237]: $\omega_i = 1/3$ for $i = 0$, $\omega_i = 1/18$ for $i = 1 \dots 3, 10 \dots 12$ and $\omega_i = 1/36$ for $i = 4 \dots 9, 13 \dots 18$.

The last term in Eq. (6.2) accounts for the source term in the LB equation, which is a discretized form of any applied external force \mathcal{F} . The source term is included using Guo's forcing scheme with respect to the MRT operator [138, 171]:

$$S_i^k = \sum_j \left[\mathcal{M}^{-1} \left(\mathcal{I} - \frac{1}{2} \mathcal{S} \right) \right]_{ij} \omega_j \left[\frac{\boldsymbol{\xi}_j - \mathbf{u}^k}{c_s^2} + \frac{(\boldsymbol{\xi}_j \cdot \mathbf{u}^k) \boldsymbol{\xi}_j}{c_s^4} \right] \cdot \mathcal{F}, \quad (6.8)$$

with \mathcal{I} the 19×19 identity matrix.

With the individual species approach in the LBM, two external forces are included in the external force \mathcal{F} . The first external force identified as \mathcal{F}_B^k accounts for a pseudo-speed of sound to allow simulations of species with different molecular masses on the same discretization scheme [138]:

$$\mathcal{F}_B^k(\mathbf{x}) = \left(1 - \frac{m^k}{m^{\text{ref}}} \right) c_s^2 \nabla \rho^k, \quad (6.9)$$

where m^k and m^{ref} are respectively the k -th and reference molecular masses, and the partial density gradient vector $\nabla \rho^k$ is computed with the nearest neighbors isotropic finite difference [138, 176, 233].

In practical LBM simulations, the lighter component is the reference one, and the other quantities are rescaled accordingly with respect to the molecular mass ratio. From this rescaling, a species speed of sound c_s^k is derived as [138, 233]:

$$c_s^k = c_s^{\text{ref}} \sqrt{\frac{m^k}{m^{\text{ref}}}} = c_s \sqrt{\frac{m^k}{m^{\text{ref}}}} = \frac{c}{\sqrt{3}} \sqrt{\frac{m^k}{m^{\text{ref}}}}. \quad (6.10)$$

The second external force identified as \mathcal{F}_D^k on a given species distribution function accounts for the interspecies friction force describing the binary diffusion phenomenon. By recovering the Maxwell-Stefan diffusion equation at the macroscopic level [132, 138], it writes as:

$$\mathcal{F}_D^k = -p^{\text{mix}} \sum_{l=1, l \neq k}^N \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l), \quad (6.11)$$

with p^{mix} the mixture (or total pressure) and D^{kl} the binary diffusion coefficient between k and l particles.

The macroscopic quantities for each component are recovered by calculating the zeroth and first-order moments of the species distribution function [138]:

$$\rho^k = \sum_i f_i^k \quad (6.12)$$

$$\rho^k \mathbf{u}^k = \sum_i \xi_i^k f_i^k + \frac{1}{2} \mathcal{F}^k \quad (6.13)$$

with $\mathcal{F}^k = \mathcal{F}_B^k + \mathcal{F}_D^k$. The mixture quantities are obtained with simple mixing rule [138]:

$$\rho^{\text{mix}} = \sum_k \rho^k, \quad \rho^{\text{mix}} \mathbf{u}^{\text{mix}} = \sum_k \rho^k \mathbf{u}^k. \quad (6.14)$$

Finally, the partial and total pressure p^k and p^{mix} are recovered using the classical LB isothermal equation of state and the species speed of sound given in Eq. (6.10):

$$p^k = \rho^k (c_s^k)^2, \quad p^{\text{mix}} = \sum_k p^k. \quad (6.15)$$

The macroscopic conservation equations for each species are recovered through a modified Chapman-Enskog analysis [132]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho^k}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho^k \mathbf{u}^k) &= 0, \\ \frac{\partial (\rho^k \mathbf{u}^k)}{\partial t} + (\rho^k \mathbf{u}^k) \cdot \nabla \mathbf{u}^k &= -\nabla p^k + \nabla \cdot \left\{ \eta^k \left[\nabla \mathbf{u}^k + (\mathbf{u}^k)^T \right] \right\}, \\ &\quad - p^{\text{mix}} \sum_{l=1, l \neq k}^N \frac{\chi^k \chi^l}{D^{kl}} (\mathbf{u}^k - \mathbf{u}^l) \end{aligned} \quad (6.16)$$

where η^k is the k -component partial dynamic viscosity.

6.3.2 Transport coefficients and rarefaction rate

Owing to the kinetic theory of gases, a relationship exists between the mean free path of a gas molecule and its dynamic viscosity [140]. In the case of gaseous mixtures, the mean free path reduces due to the presence of the molecules of the other components [28]. Therefore,

the species mean free path is introduced as:

$$\lambda^k = \left[\frac{p^k}{k_B T} \pi (d^k)^2 \sqrt{2} + \sum_{l \neq k}^N \frac{p^l}{k_B T} \pi (d^{kl})^2 \sqrt{\frac{m^k}{m^{kl}}} \right]^{-1}, \quad (6.17)$$

where k_B is the Boltzmann constant and T is the gas temperature. The reduced molecular diameter d^{kl} and mass m^{kl} are expressed as a function of the individual species ones, respectively d^k and d^l , and m^k and m^l by:

$$d^{kl} = \frac{d^k + d^l}{2}, \quad \frac{1}{m^{kl}} = \frac{1}{m^k} + \frac{1}{m^l}. \quad (6.18)$$

The mixture mean free path is also retrieved from the mixing rule [28]:

$$\lambda^{\text{mix}} = \sum_{k=1}^N \chi^k \lambda^k. \quad (6.19)$$

At the same time, the dynamic viscosity of a pure component η_0^k using the rigid-sphere model of gas particles writes as [140]:

$$\eta_0^k = \frac{5}{16} \frac{\sqrt{\pi k_B m^k T}}{\pi (d^k)^2}, \quad (6.20)$$

and the species and mixture dynamic viscosities η^k and η^{mix} are recovered with Wilke's law for gaseous mixtures [10, 69, 233].

In a previous study [233], the reference Kn^{ref} was based on the lighter species (of molecular mass m^{ref}) and leads to:

$$\eta_0^k = \frac{5\sqrt{2}}{16} \chi^k p^{\text{mix}} \sqrt{\frac{\pi m^k}{k_B T}} \left[1 + \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{l=1, l \neq k}^N \frac{\chi^l (d^{kl})^2}{\chi^k (d^k)^2} \sqrt{\frac{m^k}{m^{kl}}} \right] \text{Kn}^{\text{ref}} H, \quad (6.21)$$

which can be applied to retrieve a Kn-related relaxation time for τ_s^k .

In the limiting case of a pure component, the partial dynamic viscosity reduces to the pure viscosity expression η_0 without the superscript “k” as there is only one single component. Finally, Eq. (6.20) can be approximated by the widely used relationship [7, 87, 94, 130, 131]:

$$\eta_0 = p \text{Kn} H \sqrt{\frac{2m}{\pi k_B T}}, \quad (6.22)$$

by noticing that $5\sqrt{2\pi}/16 \simeq 0.8 \simeq \sqrt{2/\pi}$, ensuring the indifferentiability principle for the

viscosity calculation.

The same theoretical derivation goes for the binary diffusion coefficient D^{kl} with respect to the kinetic theory of gases and leads to [233]:

$$D^{kl} = \frac{3}{16} \sqrt{\frac{2\pi k_B T}{m^{kl}}} \left[\chi^k \sqrt{2} \left(\frac{d^k}{d^{kl}} \right)^2 + \sum_{l=1, l \neq k}^N \chi^l \sqrt{\frac{m^k}{m^{kl}}} \right] \text{Kn}^{\text{ref}} H. \quad (6.23)$$

More details on the derivation from the species mean free path in a mixture to the species and mixture transport coefficients may be found in the original article [233].

6.3.3 Effective viscosity calculation with a ray-tracing approach

The failure of the linear stress-strain relationship in the Knudsen layer [6, 29, 236] at highly rarefied regimes is treated in the LBM by integrating a wall function Ψ to compute an “effective” mean free path λ_e which takes the presence of solid walls into account [97, 99]. Therefore, an “effective” dynamic viscosity η_e is obtained with respect to the kinetic theory of gases and writes as [240]:

$$\Psi(\mathbf{x}, \lambda) = \frac{\lambda_e(\mathbf{x})}{\lambda} = \frac{\eta_e(\mathbf{x})}{\eta}, \quad (6.24)$$

where λ and η respectively define the unbounded mean free path and dynamic viscosity, and $0 \leq \psi(\mathbf{x}, \lambda) \leq 1$.

In this work, the effective mean free path is recovered through an integration procedure using a ray-tracing approach [145, 236] and extended to gaseous mixtures.

Considering a gas molecule traveling from the position \mathbf{x} in the direction (θ, ϕ) by considering the spherical coordinate system (R, θ, ϕ) , it is possible to compute the distance to the wall $R(\theta, \phi)$ through a line segment, also called a “ray”. The probability p that a distance greater than R is traveled between two collisions is determined by a free path distribution $\psi(r)$:

$$p(R) = \int_R^\infty \psi(r) dr, \quad \psi(r) = \frac{1}{\lambda} \exp\left(-\frac{r}{\lambda}\right), \quad (6.25)$$

where r is the free path of the gas molecule. Along the free path of length r , the gas molecule may either collide with a solid wall ($r > R(\theta, \phi)$) or with another molecule prior to the wall ($r < R(\theta, \phi)$). The mean free path in the direction (θ, ϕ) becomes:

$$\lambda(R(\theta, \phi)) = \int_0^{R(\theta, \phi)} r \psi(r) dr + \int_{R(\theta, \phi)}^\infty R(\theta, \phi) \psi(r) dr. \quad (6.26)$$

When a ray does not cross a solid boundary, $R = \infty$ and $\lambda(R(\theta, \phi)) = \lambda$. The effective mean

free path $\lambda_e(\mathbf{x})$ is recovered through a spherical integral using Eq. (6.26) [98]:

$$\lambda_e(\mathbf{x}) = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \lambda(R(\theta, \psi))g(\theta, \phi) \sin(\phi)d\phi d\theta, \quad (6.27)$$

where $g(\theta, \phi) = 1/(4\pi)$ is the uniform angular distribution function [98].

The ray-tracing approach being initially designed for single component flows, the procedure is adapted to gaseous mixtures by considering species wall functions $\Psi^k(\mathbf{x}, \lambda^k)$ based on species quantities:

$$\Psi^k(\mathbf{x}, \lambda^k) = \frac{\lambda_e^k(\mathbf{x})}{\lambda^k} = \frac{\eta_e^k(\mathbf{x})}{\eta^k}. \quad (6.28)$$

The parameters listed below are set for all of the simulations performed in this work. The angular steps for θ and ϕ were both set to $\Delta\theta = \Delta\phi = 2\pi/32$ to calculate Eq. (6.27) with the mid-point integration rule. A cutoff length of $R = 10\lambda^k$ was chosen, after which R was set to infinity. More details on the development and verification of this approach can be found in the original article [145, 236].

6.3.4 Knudsen diffusion

Computing an effective and local viscosity value by considering the local geometry as described in Sec. 6.3.3 reflects on the binary diffusion coefficient as well. To perform simulations in the rarefied regime with the same magnitude of viscous to diffusive effects, the mixture Schmidt number (Sc^{mix}) is introduced:

$$\text{Sc}^{\text{mix}} = \frac{\eta^{\text{mix}}}{\rho^{\text{mix}} D^{kl}}. \quad (6.29)$$

Therefore, an effective binary diffusion coefficient D_e^{kl} can be obtained by keeping Sc^{mix} constant throughout the domain (i.e., $D_e^{kl} = D^{kl}\eta^{\text{mix}}/\text{Sc}^{\text{mix}}$). However, the effective coefficient obtained still does not take Knudsen diffusion into account.

Knudsen diffusion is the transport mechanism when gas particles flow almost freely without any gas-gas collisions. The only collisions affecting the motion of the gas particles occur with the solid walls. In mixture flows, the diffusive transport mechanism is related to interspecies interactions and its magnitude is inversely proportional to the pressure [138, 140]. In highly rarefied regimes, the expression for the binary diffusion coefficient does no longer hold true as interspecies collisions become rare, and the main diffusion mechanism is ruled by Knudsen diffusion. Therefore, the k -component effective binary diffusion coefficient D_e^{kl} must verify

the following limiting values within the whole range of rarefaction:

$$\begin{aligned}\lim_{\text{Kn} \rightarrow 0} D_e^{kl} &= D^{kl}, \\ \lim_{\text{Kn} \rightarrow \infty} D_e^{kl} &= D_K^k.\end{aligned}\tag{6.30}$$

where D_K^k is the Knudsen diffusion coefficient and expresses as:

$$D_K^k = \frac{H}{3} \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m^k}}.\tag{6.31}$$

An interpolation model for D_e^{kl} verifying the limit values is proposed by Dongari *et al.* [117]:

$$D_e^{kl} = \left[(D^{kl})^c + (D_K^k)^c \right]^{\frac{1}{c}},\tag{6.32}$$

with c may vary between -2 and -1 according to Ref. [117] with comparable accuracy. In the current LBM model, $c = -2$ was chosen to best fit the reference results.

6.3.5 Slip boundary conditions for arbitrary geometries

Among the existing slip boundary conditions in the LBM, the combined bounce-back and specular reflection (CBBSR) has been preferred based on previous observations [233] to maintain the related boundary condition coefficients within 0 and 1. A discrete distribution function undergoing CBBSR boundary condition is updated according to the following expression [26, 83, 92]:

$$f_{i,\text{CBBSR}}^k(\mathbf{x}, t + \delta t) = r^k f_{i,\text{BB}}^{k*}(\mathbf{x}, t) + (1 - r) f_{i,\text{SR}}^{k*}(\mathbf{x}, t),\tag{6.33}$$

where r^k is the boundary coefficient for the CBBSR scheme. Its value ranges from 0 to 1, and defines the given proportion of the post-collision distribution function coming from bounce-back behavior (identified by $f_{i,\text{BB}}^{k*}$) or specular reflection behavior (identified by $f_{i,\text{SR}}^{k*}$). The different distribution functions are related to one another with respect to their discrete velocities by:

$$\begin{cases} \boldsymbol{\xi}_{i,\text{CBBSR}} = -\boldsymbol{\xi}_{i,\text{BB}}, \\ \boldsymbol{\xi}_{i,\text{CBBSR}} \cdot \mathbf{n} = -\boldsymbol{\xi}_{i,\text{SR}} \cdot \mathbf{n}, \\ \boldsymbol{\xi}_{i,\text{CBBSR}} \cdot \mathbf{t} = \boldsymbol{\xi}_{i,\text{SR}} \cdot \mathbf{t}, \end{cases}\tag{6.34}$$

where \mathbf{n} and \mathbf{t} are respectively the normal and tangential vectors to the solid wall. Eq. (6.34) shows that the boundary condition is strongly dependent on the wall orientation and generalizing it to arbitrary geometries is not straightforward. From this observation, a general im-

plementation of the CBBSR boundary condition is proposed. For the ease of understanding, the implementation is explained by using the D2Q9 discretization stencil, but the approach for three-dimensional geometries is similar.

Fig. 6.2 exhibits a simulation domain containing both fluid and solid nodes. Fluid nodes undergoing the CBBSR boundary condition is highlighted in light gray. The vectors of the surrounding solid nodes to the boundary fluid nodes are also displayed. Following the D2Q9 discretization stencil, the unknown distribution functions in red color pointing towards the fluid domain are updated through the following steps:

1. The distribution functions pointing in the opposite direction to each solid wall are unknown and undergo CBBSR treatment given by Eq. (6.33);
2. In the case where a fluid node has only a solid node in the diagonal direction, e.g., the “(b)” boundary fluid node (labeled on the top left corner in Fig. 6.2), the unknown distribution function is updated with bounce-back treatment;
3. The unknown distribution functions that have been calculated several times because of the CBBSR boundary condition, e.g., for the “(a)” boundary fluid node, are averaged by the number of times it has been updated.

For the “(a)” boundary fluid node, the discrete functions f_1^k , f_2^k and f_8^k follow Eq. (6.33) because of \mathbf{n}_1 , and the same goes for f_2^k , f_3^k and f_4^k because of \mathbf{n}_2 . As f_2^k is calculated twice, the post-CBBSR distribution functions are obtained with help of Eq. (6.34):

$$\begin{aligned}
 f_{1,\text{CBBSR}}^k &= f_5^{k*}, \\
 f_{2,\text{CBBSR}}^k &= r^k f_6^{k*} + \frac{(1-r^k)}{2} (f_4^{k*} + f_8^{k*}), \\
 f_{3,\text{CBBSR}}^k &= f_7^{k*}, \\
 f_{4,\text{CBBSR}}^k &= r^k f_8^{k*} + (1-r^k) f_6^{k*}, \\
 f_{8,\text{CBBSR}}^k &= r^k f_4^{k*} + (1-r^k) f_6^{k*}.
 \end{aligned} \tag{6.35}$$

In rarefied regimes, the species slip velocity magnitude is described by Maxwell macroscopic slip model [5, 233]:

$$u_s^k = C^k \lambda^k \left. \frac{\partial u}{\partial \mathbf{n}} \right|_{\text{wall}}, \tag{6.36}$$

where C^k is the k -component velocity slip coefficient, and $\partial u / \partial \mathbf{n}|_{\text{wall}}$ is the velocity gradient tangential to the wall. As a first approximation, the species velocity slip coefficients C^k are considered equal to the mixture velocity slip coefficient C^{mix} and calculated with the linearized Boltzmann equation [12, 233].

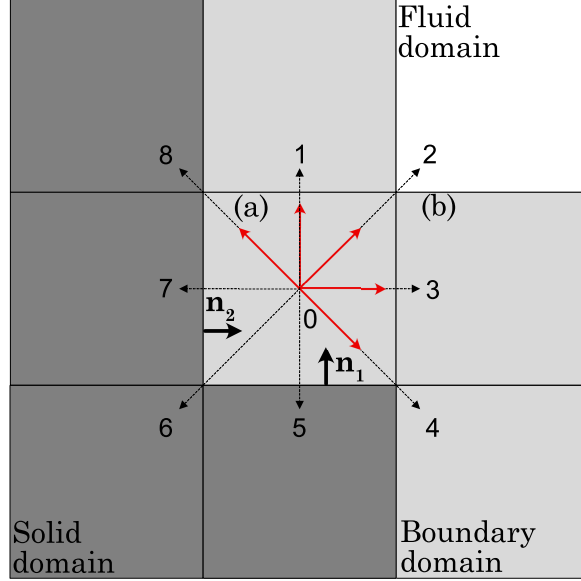


Figure 6.2 Scheme of the CBBSR boundary condition for arbitrary geometries. Dark gray color accounts for solid nodes, light gray color accounts for fluid boundary nodes, white color accounts for fluid nodes in the bulk domain.

Finally, the rarefied coefficient r^k is computed as [233]:

$$r^k = \frac{C^{\text{mix}} \lambda^k}{C^{\text{mix}} \lambda^k + 3\nu^k}, \quad (6.37)$$

where $\nu^k = \eta^k / \rho^k$ is the k -component kinematic viscosity.

6.4 Numerical results

Simulation results for different cases are displayed in this section. For the sake of simplicity, all of the gaseous mixtures are only composed of two components ($N = 2$). Verification and validation of the model are first performed through microchannels in the rarefied regime. The inclusion of Knudsen diffusion and the relevancy of a geometry based wall function are highlighted by comparing the numerical results with the previous developed models. The final case exhibits a simple porous media to investigate the geometrical effects on mixture flow and gas phase separation phenomenon in the rarefied regime.

6.4.1 Model verification

The numerical model is initially verified for an equimolar He-Ar mixture flow in a circular microchannel. To this aim, the species velocity profiles are compared to the analytical solu-

tions developed by Kerkhof *et al.* [10], obtained by solving Eq. (6.16) with a slip boundary condition. The molecular characteristics of interest are listed in Table 6.1.

Table 6.1 Molecular characteristics of the gaseous mixtures from the hard-sphere model [2].

Property	Unit	He	Ne	Ar	Kr	Xe
Mass	[g/mol]	4.003	20.18	39.94	83.80	131.3
Diameter	$10^{10} \times [\text{m}]$	2.745	2.602	3.659	4.199	4.939

The simulated flow is pressure driven by applying Zou and He pressure boundary conditions [212] at the inlet and outlet of the domain to ensure a low pressure ratio to avoid compressibility effects: $\mathcal{R}_p = p_{\text{in}}^{\text{mix}}/p_{\text{out}}^{\text{mix}} = 1.01$. The rarefaction rate is set to $\text{Kn}^{\text{mix}} = 0.1$, whereas the generalized CBBSR boundary condition described in Sec. 6.3.5 is applied at the fluid-solid interface. The wall function and Knudsen diffusion are both implemented. Finally, to avoid numerical defects that may occur in the rarefied regime, a regularization procedure [241] is initiated at the pre-collision step of the LBM algorithm. The microchannel is discretized by $n_x = 500$ nodes along the x -direction where the pressure gradient is applied. The radius of the microchannel is discretized by $R = 10$ nodes.

The normalized axial velocity profiles for He and Ar against the normalized radius $r^* = r/R$ are displayed in Fig. 6.3 against their analytical counterpart. The normalization of the velocities is given by the following expression:

$$u^k = u^{k*} \sqrt{\frac{k_B T}{2m^{\text{mix}}} \frac{\nabla p^{\text{mix}}}{p^{\text{mix}}}}, \quad (6.38)$$

where $m^{\text{mix}} = \chi^{\text{He}} m^{\text{He}} + \chi^{\text{Ar}} m^{\text{Ar}}$ is the mixture molecular mass.

The numerical profiles are in good agreement with the analytical solution obtained with the extended macroscopic equations. The species velocity profiles are almost identical, indicating almost no separation phenomenon. At the vicinity of the walls, there is a slight deviation between the analytical solution and the numerical model because of the different modeling of the slip boundary condition [10]. However, the present numerical LBM is able to precisely capture the bulk velocities of each species.

In addition, a convergence study is conducted to investigate the accuracy of the model. Different mesh sizes are used by discretizing the radius of the microchannel from 5 to 40 nodes, and by rescaling the pressure ratio accordingly to keep the velocities constant. The relative error for the species velocity is computed with L²-norm (see Eq. (35) of Ref. [86]). Fig. 6.4 gives the relative error for the species velocities at the different mesh sizes. The results exhibit a first-order convergence rate, consistent with the other observations in the

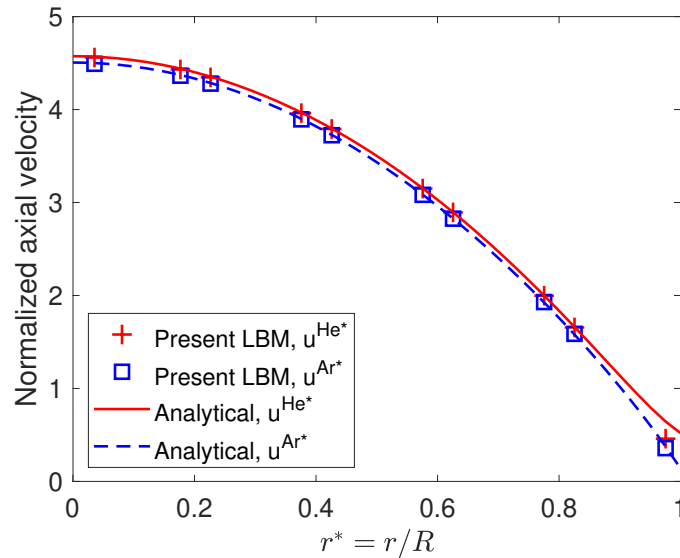


Figure 6.3 Normalized axial velocity of He and Ar of an equimolar He-Ar mixture in a cylindrical microchannel at $\text{Kn}^{\text{mix}} = 0.1$. The analytical solution is extracted from Kerkhof *et al.* [10].

literature when simulating flows in the rarefied regime [86, 93].

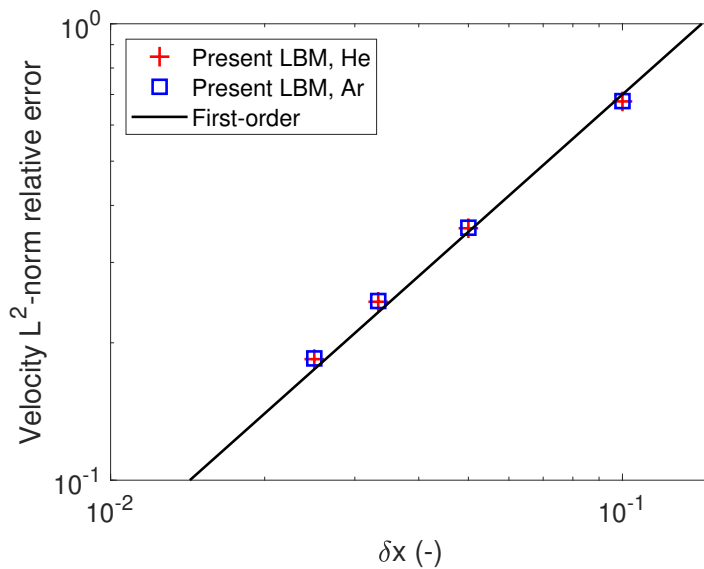


Figure 6.4 Velocity L^2 -norm relative error of He and Ar of an equimolar He-Ar mixture in a cylindrical microchannel at $\text{Kn}^{\text{mix}} = 0.1$.

The numerical model is thus able to properly recover the respective velocities of each species of the mixture and is consistent with the analytical solution in the slip flow regime. The next

test case investigates the capabilities of the model at higher rarefied regimes.

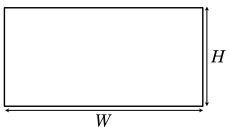
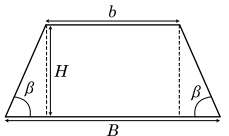
6.4.2 Mixture mass flow rate calculation

A validation test case is performed in long microchannels with different cross-section shapes to assess the capabilities of the model at high Kn. The reference data is taken from the experimental measurements of Pitakarnnop *et al.* [3] for the rectangular cross-section and Szalmas *et al.* [4] for the trapezoidal one. In their work, the mixture flow rate is measured for various binary mixtures at different compositions using the constant volume method [4]. In this purpose, the outlet pressure $p_{\text{out}}^{\text{mix}}$ is imposed at 2, 8 and 15 kPa whereas the pressure ratio \mathcal{R}_p is varied. To validate the current numerical model, the mixture flow considered is an equimolar mixture of He-Ar. The dimensions of the rectangular and trapezoidal cross-sections are given in Table 6.2 and the length of the microchannels is 5 mm.

Some adaptations must be made to model the experimental setup numerically, as simulating the entire microchannel would be computationally costly. Thus, the computational domain only simulates a subsection of the whole microchannel, and the simulation parameters are rescaled accordingly to recover the same pressure gradient. The simulated subsection of the long microchannel is taken at its center, so that the mean simulated pressure is equal to the mean pressure in the actual microchannel. The resulting domain discretizations for the two microchannels are also given in Table 6.2.

In addition, simulations are performed with alternative versions of the developed model to highlight the relevancy of the developments newly introduced. The first alternative version removes Knudsen diffusion (i.e., $D_K^k = 0$ so that $D_e^{kl} = D^{kl}$), and the second one keeps the Bosanquet-type wall function from a previous iteration of the numerical model [233], without

Table 6.2 Dimensions and domain discretizations for rectangular [3] and trapezoidal [4] cross-section microchannels.

Cross-section scheme	Physical parameters	LBM discretization $n_x \times n_y \times n_z$
	$H = 1.88 \mu\text{m}$ $W = 21.2 \mu\text{m}$	$800 \times 224 \times 20$
	$H = 1.90 \mu\text{m}$ $B = 5.38 \mu\text{m}$ $b = 2.69 \mu\text{m}$ $\beta = 54.74^\circ$	$800 \times 21 \times 55$

Knudsen diffusion again. The versions will be respectively identified as “LBM-noKD” and “LBM-Bosanquet” in the subsequent figures, whereas the original model will be labeled as “Present LBM”.

The mass flow rates for the He-Ar mixture are first plotted for the trapezoidal microchannel against the pressure ratio for an outlet pressure of 15 kPa in Fig. 6.5 and 8 kPa in Fig. 6.6. The experimental results extracted from Szalmas et al. [4] exhibit error bars to account for measurement uncertainty. As expected, the mixture mass flow rate increases with the pressure ratio. When $p_{\text{out}}^{\text{mix}} = 15$ kPa, the inclusion of Knudsen diffusion has little effect on the mass flow rate calculation. This can be explained by the low rarefied regime, as $\text{Kn}^{\text{mix}} \simeq 0.27$ at the outlet of the domain based on the hydraulic diameter of the trapezoidal microchannel. In this regime, Knudsen diffusion does not contribute much to the global flow rate. Thus, numerical results fall within the error margin of the experimental measurements even without considering Knudsen diffusion. However, the implementation of a local wall function still remains relevant, as the mass flow rate is underestimated with the Bosanquet-type wall function. At 8 kPa, the regime becomes more rarefied ($\text{Kn}^{\text{mix}} \simeq 0.51$), and the deviation becomes significant when integrating Knudsen diffusion or not. Despite the increasing difference in mass flow rate calculation, the numerical results from the original model are in good agreement with the experimental data with or without Knudsen diffusion. To emphasize the increasing contribution of Knudsen diffusion, we perform the similar simulations at higher rarefied regimes but for the rectangular cross-section microchannel.

Mass flow rates calculated with the different numerical models are plotted for the rectangular cross-section microchannel against the pressure ratio for an outlet pressure $p_{\text{out}}^{\text{mix}} = 15$ kPa in Fig. 6.7 and $p_{\text{out}}^{\text{mix}} = 2$ kPa in Fig. 6.8. We notice similar trends between the two types of microchannels. With the Bosanquet-type wall function, the mixture mass flow rate is largely underestimated for $p_{\text{out}}^{\text{mix}} = 15$ kPa whereas the two other models are in good agreement with the experimental results. Again, the small influence of Knudsen diffusion in mass flow rate is explained by the low rarefaction rate of the experimental measurements ($\text{Kn}^{\text{mix}} \simeq 0.35$ based on the height of the microchannel). However, at 2 kPa, the inclusion of Knudsen diffusion becomes even more necessary as the transport mechanism is almost dominant at this rarefaction rate ($\text{Kn}^{\text{mix}} \simeq 2.6$). Numerical results obtained with the “LBM-noKD” model deviate even more from the experimental data than for the trapezoidal microchannel as the rarefaction rate is even greater. Therefore, it is crucial to include Knudsen diffusion as well as implementing a local wall function to simulate mixture flows in the transition flow regime, which is achieved by the present LBM.

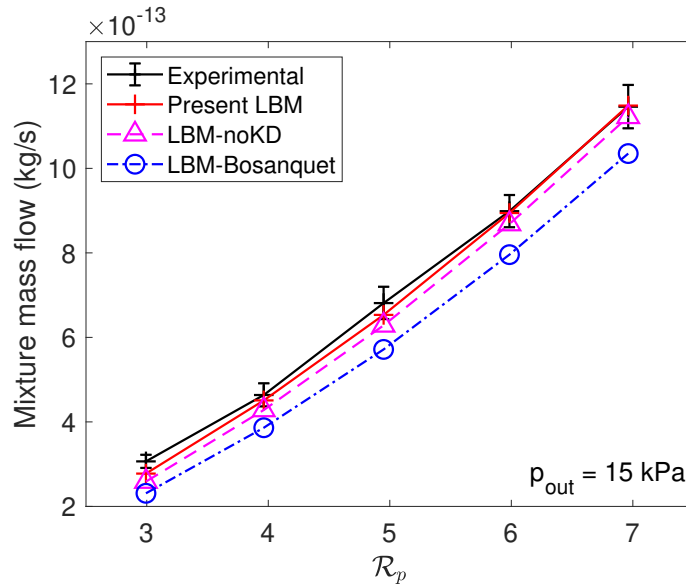


Figure 6.5 Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 15 kPa in a trapezoidal cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Szalmas *et al.* [4].

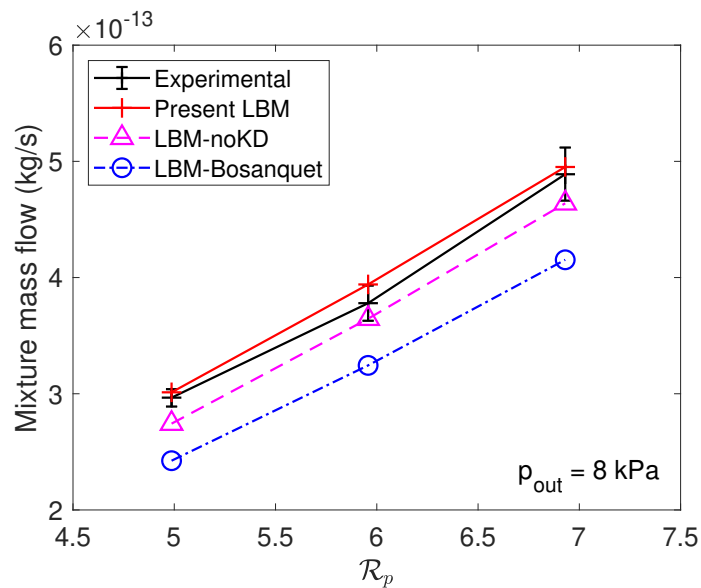


Figure 6.6 Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 8 kPa in a trapezoidal cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Szalmas *et al.* [4].

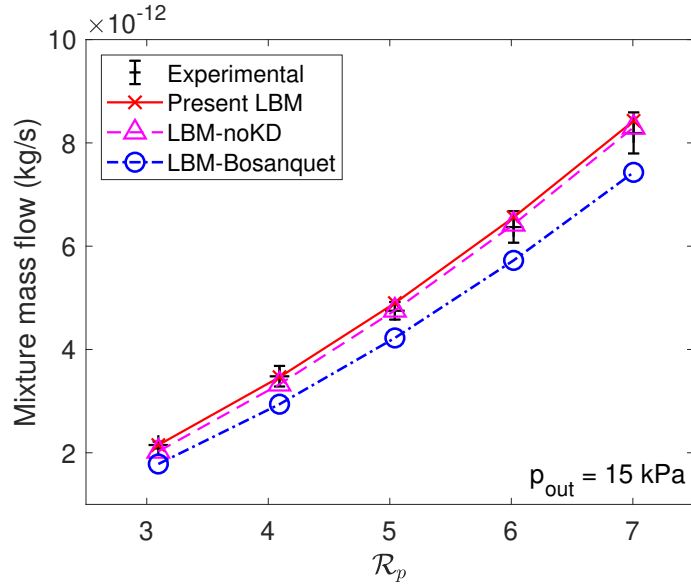


Figure 6.7 Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 15 kPa in a rectangular cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Pitakarnnop *et al.* [3].

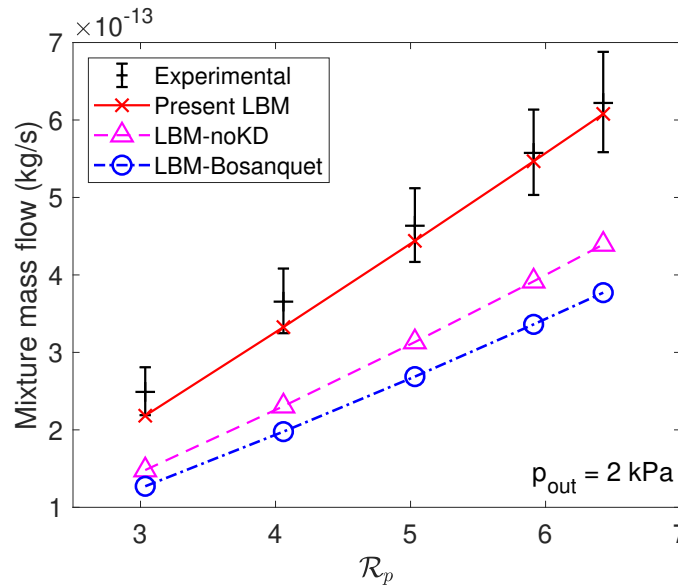


Figure 6.8 Mass flow rates of an equimolar He-Ar mixture against the pressure ratio at an outlet pressure of 2 kPa in a rectangular cross-section microchannel. Experimental results are extracted from Pitakarnnop *et al.* [3].

6.4.3 Rarefied multicomponent flow in porous media

As rarefied flow in porous media has been investigated for pure component flows [104, 142, 143, 207, 226], the present test case extends the study to gaseous mixtures. For this purpose,

the numerical model is applied for binary gaseous flows in the rarefied regime through a 3D porous geometry built by arranging spheres of radius R in a staggered fashion as displayed in Fig. 6.9. Inlet and outlet fluid buffers are joined to the porous structure to ensure a fully developed flow. The gaseous mixtures flow through the porous media by means of a pressure gradient along x -direction imposed by pressure boundary conditions as in Sec. 6.4.1, whereas periodic boundary conditions are applied on the remaining sides of the domain. Flow behavior in microporous media for the species and the mixture in microporous media is evaluated by its permeability. In the hydrodynamic regime, permeability can be computed using Darcy's law as long as inertial effects are neglected [13]. For gaseous mixtures, the species and mixture apparent permeabilities K^k and K^{mix} are related to their respective velocities, so that:

$$K^{\text{mix}} = \eta^{\text{mix}} \bar{u}^{\text{mix}} \frac{\Delta p^{\text{mix}}}{L}, \quad (6.39)$$

$$K^k = \eta^{\text{mix}} \bar{u}^k \frac{\Delta p^{\text{mix}}}{L}, \quad (6.40)$$

where \bar{u}^{mix} and \bar{u}^k are respectively the average streamwise mixture and species velocities.

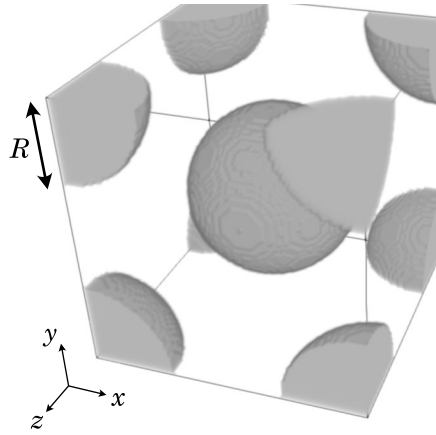


Figure 6.9 Microporous geometry

A preliminary study is conducted to set the domain discretization so that permeability values are mesh independent. Multicomponent and rarefied effects are first neglected. Thus, gas permeability is computed at different mesh sizes in the hydrodynamic regime and for a single component. Simulations are performed for porosities $\epsilon = 0.4, 0.6$ and 0.8 by varying the radius of the spheres without changing their location. Permeability values are displayed in Fig. 6.10 and are compared with the reference data from Jeong *et al.* [13] obtained for the same geometry. The subscript “0” in Fig. 6.10 stands for the intrinsic permeability computed

in the hydrodynamic regime as opposed to the apparent permeability. Its value is normalized with the diameter of the sphere $D = 2R$, so that $K_0^* = K_0/D^2$. Results are in good agreement with the correlation even for the coarsest grid regardless of the porosity. When compared to the finest grid, the relative numerical error on the permeability is smaller than 5% for the $100 \times 100 \times 100$ discretization for all porosities. The width of the buffer fluid zone is set to 20 nodes, so that the total simulation domain has $140 \times 100 \times 100$ nodes.

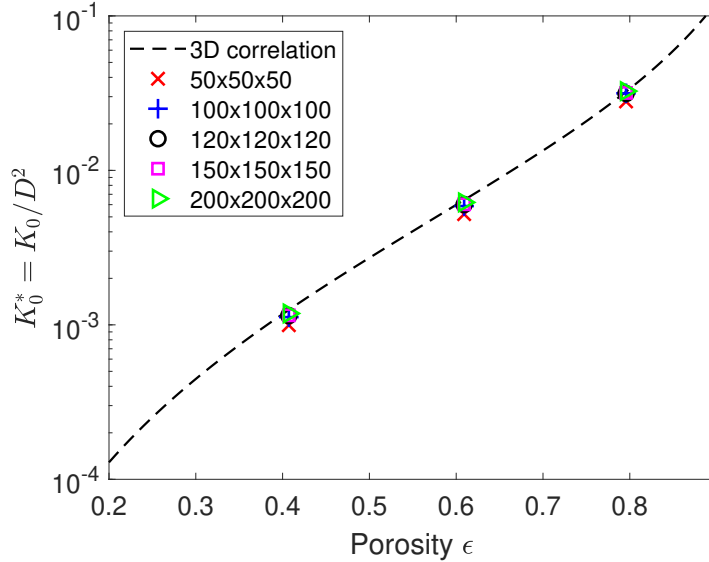


Figure 6.10 Normalized intrinsic permeability against porosity for different mesh sizes for the 3D staggered sphere geometry. The 3D correlation is taken from Jeong *et al.* [13].

Previous studies have theoretically calculated the permeability enhancement factor for gaseous mixture flows [182,206], but mainly focused on the influence of molar fraction or the addition of a third component. In the present study, the effects of porosity and mixture composition on the species and mixture apparent permeabilities are numerically investigated.

Influence of porosity

As porosity changes, the characteristic length varies as well. Therefore, under the same flow conditions, the rarefaction effects may have a different magnitude whether the solid structure has a low or a high porosity, and affects the species and mixture permeability. Here, an equimolar He-Ar flow is simulated through the 3D staggered sphere structure with porosity ranging from 0.4 to 0.8. The simulations are performed for a mixture Knudsen number Kn^{mix} ranging from 0.005 to 1.5 to cover a wide range of flow regimes. Unlike microchannel flows, the characteristic length to compute Kn^{mix} must rely on a relevant length which describes the

porous media. We define the geometry by its mean pore diameter d_p given by the following expression [14]:

$$d_p = \sqrt{\frac{8K_0 C_o}{\tau_{or}^2 \epsilon}}, \quad (6.41)$$

where C_o and τ_{or} are respectively the constriction and the tortuosity of the porous media defined in the reference article [14].

To assess the impact of rarefaction on the same scale for all geometries, the numerical results are presented for the mixture permeability enhancement factor f_c which accounts for the increase in permeability due to rarefaction:

$$f_c = K^{\text{mix}} / K_0^{\text{mix}}, \quad (6.42)$$

where K_0^{mix} is the mixture intrinsic permeability in the hydrodynamic regime.

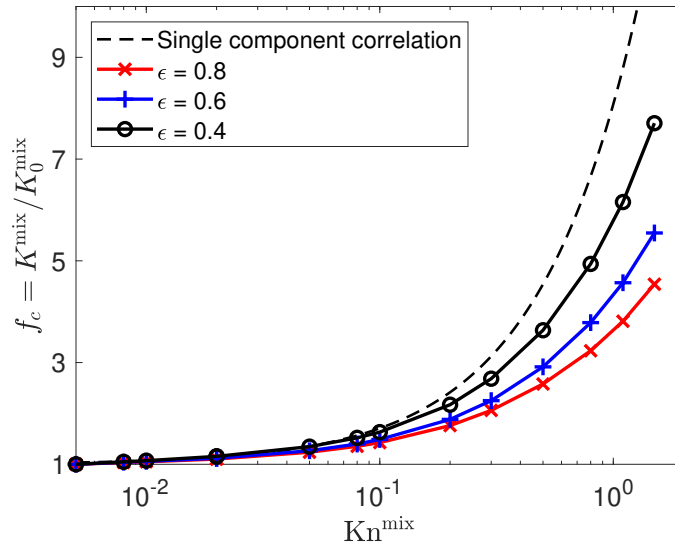


Figure 6.11 Mixture permeability enhancement factor for the He-Ar mixture against Kn^{mix} at different porosities. The single component correlation is taken from Yang *et al.* [14].

Fig. 6.11 shows the evolution of the mixture permeability enhancement factor f_c for the He-Ar equimolar mixture against Kn^{mix} for the different target porosities. The single component correlation is also plotted for comparison [14]. We can see that f_c increases with Kn^{mix} for all porosities which is expected as rarefaction tend to offset the porous media drag force with the slippage effects. The increase in Kn^{mix} results in a larger mean free path, so that the gas particles flow more freely and are less subject to gas-solid collisions that might slow them down. From the numerical results, we can identify two distinct behaviors for the mixture

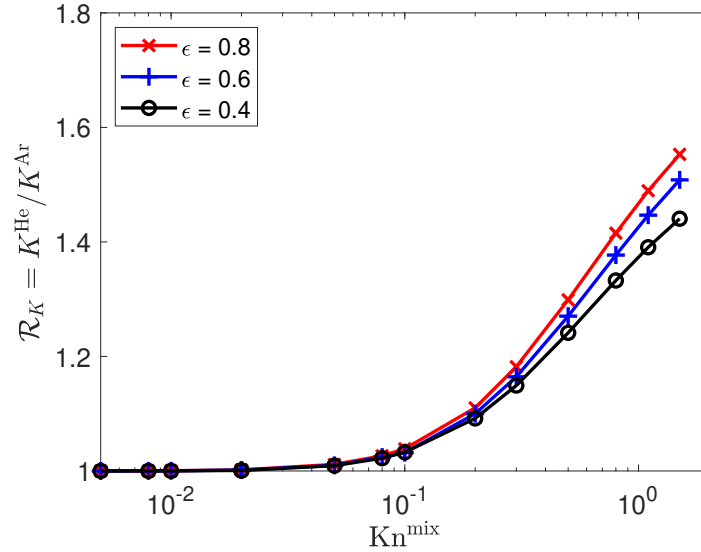


Figure 6.12 Species permeability ratio for the He-Ar mixture against Kn^{mix} at different porosities.

flow in porous media. When $\text{Kn}^{\text{mix}} < 0.1$, f_c increases with Kn^{mix} at the same rate regardless of the porosity. This is in agreement with the single component results [14], where porosity has no influence on the rate of f_c with Kn^{mix} . Therefore, the mixture behaves in a similar fashion to a single component flow. When Kn^{mix} is greater than 0.1, the rate of increase of f_c decreases with porosity. This can be qualitatively explained by the increasing presence of solid walls. Indeed, since the specific surface of the porous media increases with porosity, more slippage occur so that the rarefied flow deviates even more from the hydrodynamic behavior, resulting in a greater f_c . However, slippage effects also exist for pure component flows, and is not sufficient to solely explain the mixture flow behavior in the transition flow regime. Furthermore, the f_c of the mixture flow is consistently lower than the single component correlation regardless of the porosity.

To further investigate the behavior at highly rarefied regimes, we look at the behavior of each individual species of the mixture by displaying the species permeability ratio $\mathcal{R}_K = K^{\text{He}}/K^{\text{Ar}}$ in Fig. 6.12. The ratio increases with Kn^{mix} regardless of porosity, meaning that the lighter species He flows faster than the heavier species Ar. This behavior describing the gas phase separation is consistent with the observations made in simple microchannels [8, 70, 233]. The two types of behavior seen in Fig. 6.11 are also identified here. Indeed, the homogeneous behavior of the mixture is validated, as the value of \mathcal{R}_K approaches unity when $\text{Kn}^{\text{mix}} < 0.1$. An increase in \mathcal{R}_K with Kn^{mix} is observed above 0.1, indicating an increase in the gas separation phenomenon. The degree of separation at a given Kn^{mix} is greater at high porosity,

meaning that the presence of porous media has a mitigating effect on gas phase separation. The observations made in Fig. 6.12 may explain the rate of f_c with Kn^{mix} in Fig. 6.11. Indeed, the lowest porosity ($\epsilon = 0.4$) exhibits the lowest degree of separation, meaning that the mixture flow is less heterogeneous than for the highest porosity ($\epsilon = 0.8$). Therefore, the rate of increase in f_c related to the mixture apparent permeability could be related to the degree of heterogeneity of the mixture as shown in Fig. 6.12.

Simulations at different porosities exhibit a dependency of the mixture permeability enhancement factor on geometrical features for mixture flows, especially at high rarefied regimes. Therefore, it is crucial to take multicomponent effects into account for gaseous mixture flows in the rarefied regime to estimate the mixture apparent permeability.

Influence of mixture composition

Previous studies have reportedly noticed the increase of gas phase separation with increasing molecular mass ratio at a given rarefaction rate in simple microchannels [70, 131, 233]. The present simulations extend the investigation to microporous media. Equimolar mixtures of He-Ne, He-Ar, He-Kr and He-Xe, with molecular mass ratios \mathcal{R}_m ranging from 5 to 32 are simulated from the hydrodynamic to the transition flow regimes. The molecular properties of the different components are listed in Table 6.1. The porous geometry given in Fig. 6.9 is set to $\epsilon = 0.7$, and remains identical throughout the different mixtures.

The evolution of the permeability enhancement factor is plotted against Kn^{mix} in Fig. 6.13. Like in Sec. 6.4.3, f_c increases with Kn^{mix} for all mixtures and its evolution among the mixtures matches the previous observations. The rate of increase of f_c is similar for all mixtures when $\text{Kn}^{\text{mix}} < 0.1$. Thus, all mixtures are equally affected by the rarefied effects regardless of the molecular mass ratio. As rarefaction increases, mixtures gradually undergo different values of f_c at a given Kn^{mix} , which increases with \mathcal{R}_m . However, the molecular mass ratio seems to have less influence on the mixture apparent permeability than porosity as the values of f_c at high Kn^{mix} are less spread for the different mixtures despite a wide range of \mathcal{R}_m .

We follow up the analysis by plotting the species permeability ratios (the permeability of the lighter component is the numerator which is K^{He} in all mixtures) for the different mixtures in Fig. 6.14. We notice that the gas phase separation is larger for mixtures with greater molecular mass ratios. Also, the separation phenomenon seems to appear at a earlier rarefaction rate for mixtures of species with disparate masses, which is in agreement with mixture flow behavior in microchannels [70, 233]. Again, the degree of separation is almost negligible for all mixtures. When $\text{Kn}^{\text{mix}} > 0.1$, \mathcal{R}_K increases with Kn^{mix} at a different rate, and the degree

of gas phase separation is the greatest for the mixture with the largest molecular mass ratio. One may notice that the trend between f_c and \mathcal{R}_K observed for the porosity is the opposition for the molecular mass ratio: at a given Kn^{mix} , the mixture with the greatest value of \mathcal{R}_K has also the greatest value of f_c . The mismatching evolution with the observation in Sec. 6.4.3 can be explained as we return in the physical domain.

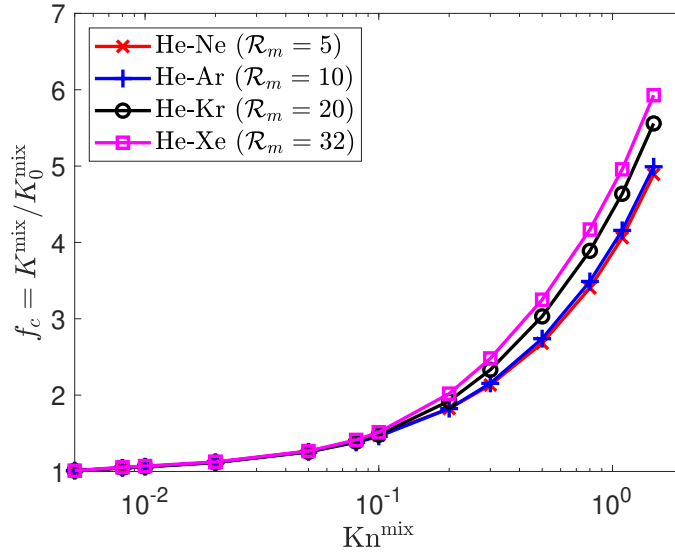


Figure 6.13 Mixture permeability enhancement factor at $\epsilon = 0.7$ against Kn^{mix} for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.

Simulations in LBM are conducted using lattice units, and a unit conversion procedure is required to extract the macroscopic physical quantities. The LBM algorithm benefits from the similarity law in fluid mechanics to simulate physical rarefied flows thanks to the use of Kn^{mix} . However, from the definition of Kn^{mix} , simulating rarefied gaseous mixtures at the same Kn^{mix} does not mean that the physical flow parameters are identical among the different mixtures. To illustrate this effect, we assume that the mean pore diameter is $d_p = 10 \mu\text{m}$ and the temperature is set to $T = 300 \text{ K}$. To achieve $\text{Kn}^{\text{mix}} = 1$, Eqs. (6.17) and (6.19) recovers a total pressure $p^{\text{mix}} = 12.2 \text{ kPa}$ for the He-Ne mixture, but only $p^{\text{mix}} = 7.9 \text{ kPa}$ for the He-Xe mixture. As the He-Xe mixture flows through the microporous media with a lower pressure, the flow is “effectively” more rarefied, and results into a higher permeability enhancement factor than for the He-Ne mixture. To recover the same flow parameters when computing with the same dimensionless number, the results are now displayed against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}} = \lambda_{\text{pure}}^{\text{He}}/d_p$, which the Knudsen number based on the mean free path of He as a pure component $\lambda_{\text{pure}}^{\text{He}}$

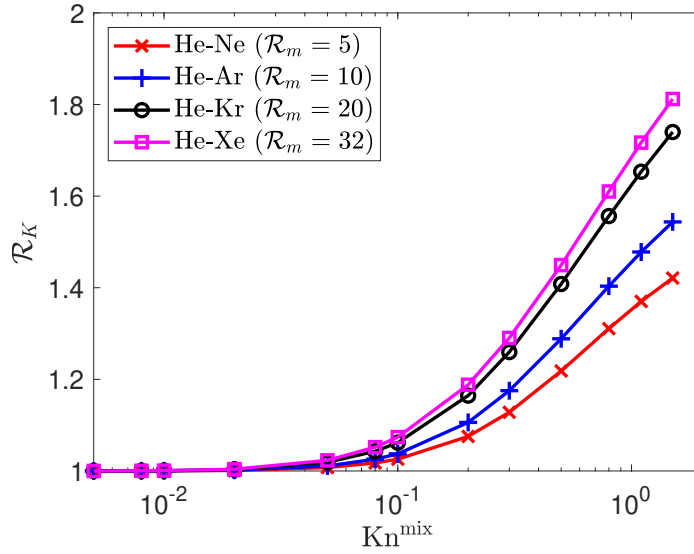


Figure 6.14 Species permeability ratio at $\epsilon = 0.7$ against Kn^{mix} for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.

defined as:

$$\lambda_{\text{pure}}^{\text{He}} = \frac{k_B T}{\sqrt{2\pi} (d^{\text{He}})^2 p^{\text{mix}}}. \quad (6.43)$$

Thus, plotting the numerical results against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ ensures the same flow parameters for the same reference rarefaction rate. It is worth noting that this issue on Kn^{mix} does not exist in Sec. 6.4.3, since the simulations are performed for the same mixture. The numerical results in Figs. 6.13 and 6.14 are now plotted against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ respectively in Figs. 6.15 and 6.16. This new display shows that all mixtures have a similar variation of the permeability enhancement factor against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ (directly related to flow pressure). Within the frame of these simulations, it would mean that the mixture apparent permeability increases with decreasing pressure independent of the mixture composition. However, all mixtures still exhibit different behavior towards rarefaction as we look at the value of \mathcal{R}_K in Fig. 6.16. Indeed, gas phase separation is still observed as the ratio increases with rarefaction rate and the degree of separation increases with \mathcal{R}_m at a given rarefaction rate (or pressure). By ensuring the same physical flow parameters for the same dimensionless number, the mixture composition seems to have little effect on the evolution of the mixture apparent permeability in rarefied regimes, although the species velocity difference still increases with the molecular mass ratio. Following the single component works [14, 90, 207], a second-order correlation for the

permeability enhancement factor f_c can be derived for gaseous mixtures:

$$f_c = 1 + a\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}} + b \left(\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}} \right)^2 \quad (6.44)$$

With the present LBM results, the correlated coefficients are $a = 2.75$ and $b = -0.37$ with $R^2 = 0.995$. One may notice that Eq. (6.44) has been developed using He as the lightest species. Thus, further work using another reference species may lead to other coefficients.

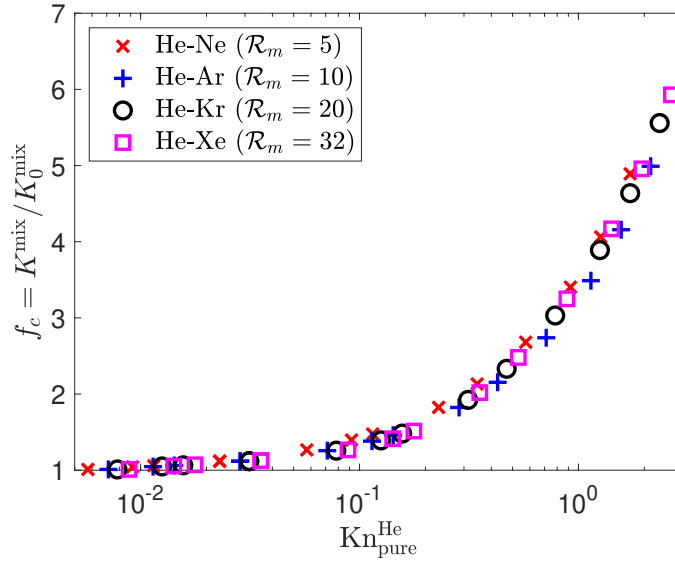


Figure 6.15 Mixture permeability enhancement factor f_c at $\epsilon = 0.7$ against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.

6.5 Conclusion

The investigation of gaseous mixture flows in microporous media in the rarefied regime was performed using an individual species based lattice Boltzmann model. The algorithm has been improved from a former development, by replacing the empirical consideration of the effective viscosity in the transition flow regime with a geometrically based wall function with a ray tracing approach. The slip boundary conditions have also been adapted to arbitrary geometries to enable microporous media simulations, and Knudsen diffusion was included through an effective binary diffusion coefficient to model the flow behavior at highly rarefied regimes. Those improvements enable three-dimensional simulations. The numerical model was first verified through a long circular microchannel for an equimolar He-Ar mixture in the slip flow regime. A first-order convergence rate was found for the current LBM model

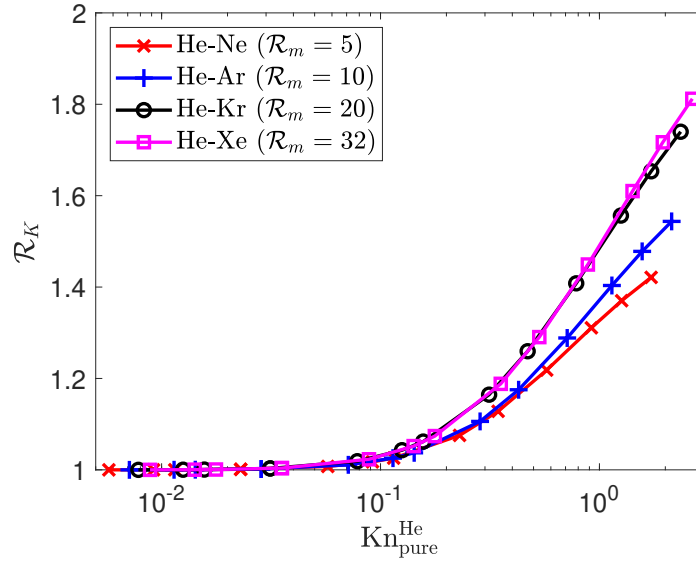


Figure 6.16 Species permeability ratio at $\epsilon = 0.7$ against $\text{Kn}_{\text{pure}}^{\text{He}}$ for equimolar binary gaseous mixtures of different molecular masses.

compared to the analytical solutions obtained by solving the extended macroscopic equations with slip boundary conditions. The model was then validated by calculating mixture mass flow rate through long rectangular and trapezoidal microchannels. Comparison with previous iterations of the numerical model shows that the mass flow rate is underestimated when the Knudsen diffusion is not included. It is noteworthy that model validation for gaseous mixtures in the rarefied regime has not been previously reported in the literature within the LB framework to the authors' knowledge. Finally, a qualitative study investigates the influence of porosity and mixture composition on the species and mixture permeability in a structured arrangement of spheres. The different behavior of a gaseous mixture compared to a single component flow in microporous media at highly rarefied regimes is exhibited. Numerical results show that gaseous mixtures flow in a similar fashion to pure component flows at low rarefied regimes until $\text{Kn}^{\text{mix}} \simeq 0.1$ regardless of porosity or mixture composition. The reduction to a single component flow is validated when looking at the species permeability ratio. Its value is near unity, meaning that the mixture is homogeneous and the species velocities are equal. At higher rarefied regimes, the permeability enhancement factor is affected by porosity. It increases at a higher rate when the regime becomes more rarefied for a low porosity geometry. Also, at a given rarefaction rate, the gas phase separation is greater when the porosity is low as well. Regarding the mixture composition, numerical results for different equimolar mixtures at various molecular mass ratios show that the gas separation phenomenon increases with molecular mass ratio. This observation is in agreement with

the ones made in simple microchannels. The permeability enhancement factor increases at a higher rate for the mixture with the largest molecular mass ratio, and thus, the greatest degree of separation. This trend is inverted compared to the one observed while varying porosity. However, the redefinition of the rarefaction rate to recover similar physical flow parameters shows that the composition of the mixture has almost no influence on the mixture permeability enhancement factor even though gas phase separation appears at highly rarefied regimes. The increasing species permeability ratio in the rarefied regime highlights the porous media selectivity and could help the design of microporous media to control the magnitude of the separation process. However, further investigation must be carefully conducted to predict the mixture flow behavior in microporous media. One of the key issues to address remains the slip behavior at solid walls of each individual species, which was approximated by the mixture slip coefficient in the current model. Because gas-solid interactions have an increasing contribution to the global flow at rarefied regimes, they must be carefully modeled. Future work could focus on developing a boundary condition to accurately recover the physical slip velocity of each species in gaseous mixtures, and extend the study to mixtures with more than two components.

Acknowledgments

This research was supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada through a grant from the Collaborative Research and Training Experience (CREATE-481695-2016) program in Simulation-based Engineering Science (Génie Par la Simulation).

CHAPITRE 7 DISCUSSION GÉNÉRALE

L'objectif principal à atteindre dans le cadre de cette thèse est de **développer un modèle de Boltzmann sur réseau capable de simuler des écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié**. Le travail a été scindé en trois parties dans ce manuscrit afin de mettre en lumière la logique de réflexion pour répondre à notre problématique globale.

La première partie s'apparente à un travail préliminaire, car elle ignore un phénomène physique majeur dans la modélisation finale souhaitée, à savoir le régime raréfié. Néanmoins, les résultats découlant de la comparaison entre les deux modélisations de mélanges gazeux miscibles sont cruciaux, car ils constituent les fondements théoriques sur lesquelles sera développée la physique associée à l'écoulement raréfié. Il faut remarquer que le choix de l'approche multifluide par rapport au simple fluide n'est pas évident. En effet, la vision dominante dans la revue de littérature est de considérer le mélange gazeux homogène et donc comme un simple fluide avec des propriétés de transport adapté au mélange. C'est le cas à l'échelle macroscopique (cela a été notamment vérifié numériquement dans l'Article 1), mais également lorsqu'il s'agit d'une description cinétique à l'échelle mésoscopique. En effet, Kerkhof et al. [10] mentionnent la remarque de Chapman et Cowling lorsque ces derniers dérivent les équations du mouvement pour un mélange gazeux : « *The momentum flux expression is the same for multicomponent mixtures as for pure fluids* » (en français, « L'expression du flux de quantité de mouvement est identique pour des mélanges multicomposant et pour des fluides purs »). Toutefois, la divergence des points de vue existe même au sein des grands scientifiques sur la modélisation multicomposant, puisqu'une autre citation de Stefan dans un article où il dérive les équations de diffusion est mentionnée dans le même article de Kerkhof et al : « *Should the real phenomena in a mixture be calculated, then it is not sufficient anymore, to consider it as a single body, like the usual mechanics does, equations should be set up, which contain the conditions for equilibrium and the laws of motion for every constituent in the mixture* » (en français, « Si les phénomènes (de transport) réels devaient être calculés pour un mélange, alors le considérer comme un corps pur ne suffirait plus pour dériver les équations de transport classiques ; ces dernières devraient être dérivées de sorte à considérer les lois du mouvement et les conditions d'équilibre pour chaque composant du mélange »). Au milieu des divergences de point de vue, nous avons modestement proposé un cadre comparatif supplémentaire basé sur des simulations d'écoulements diffusifs avec gradient de pression afin de déterminer le modèle le mieux adapté pour nos applications.

Les deux autres parties se concentrent sur des contributions numériques apportées à la mé-

thode de Boltzmann sur réseau pour la modélisation des mélanges gazeux en régime raréfié. Dans cette optique, l'Article 2 a posé les bases de l'approche multifluide adaptée au régime raréfié par la méthode de Boltzmann sur réseau. Pour ce faire, une relation entre le taux de raréfaction et les coefficients de transport a été établie grâce à la théorie cinétique des gaz. Les phénomènes physiques intrinsèques au régime raréfié (glissement aux parois, couche de Knudsen) ont été intégrés. Finalement, l'Article 3 étend le modèle développé dans l'Article 2 au domaine tridimensionnel et propose une application pratique, symbolisée par la présence d'un milieu poreux tridimensionnel. La principale limite observée dans l'Article 2 par la présence d'un coefficient empirique est surmontée par l'implémentation d'une loi de paroi alternative. La validation du modèle pour des régimes fortement raréfiés a nécessité l'adaptation du modèle aux géométries tridimensionnelles et l'inclusion du transport par diffusion de Knudsen.

Le modèle numérique développé dans le cadre de cette thèse permet de simuler un problème complexe et de mettre en évidence des comportements d'écoulement inhabituels en régime raréfié, comme la séparation de la phase gazeuse. Toutefois, la modélisation numérique comporte des limitations qui sont abordées ici.

Malgré les différentes simulations réalisées dans le cadre de cette thèse pour vérifier et valider le modèle numérique développé, celui-ci fait face à plusieurs limitations :

- Tout d'abord, il faut rappeler que la capacité de la méthode de Boltzmann sur réseau à simuler des écoulements raréfiés est limitée par sa relation à l'échelle macroscopique. En effet, l'expansion de Chapman-Enskog permettant de relier les équations macroscopiques à partir de la formulation discrète de l'équation de Boltzmann suppose un nombre de Knudsen faible [77, 156] (le développement en série des fonctions de distribution est en $o(\text{Kn})$). En régime de glissement, les équations de Navier-Stokes restent pertinentes en appliquant les bonnes conditions aux limites et l'expansion reste valide. En régime plus fortement raréfié, par exemple lorsque Kn approche de l'unité, le développement en $o(\text{Kn})$ n'est plus vraiment valide. Or, au vu du développement de la méthode en régime raréfié, l'expansion est toujours considérée comme valide, puisqu'elle définit la relation entre la viscosité dynamique et le temps de relaxation (équation (2.4)). Toutefois, les développements pour le régime raréfié ont supposé cette relation toujours vérifiée en adaptant l'expression de la viscosité pour capturer la couche de Knudsen à haut nombre de Kn . Les travaux décrits dans ce manuscrit s'appuient sur la revue de littérature qui a été rigoureusement vérifiée et validée afin de l'adapter à l'approche multifluide, elle-même vérifiée et/ou validée dans l'Article 2 et l'Article 3. Bien que le modèle implémenté puisse être étendu aux régimes plus fortement raréfiés, une analyse théorique plus rigoureuse serait nécessaire pour appuyer

les hypothèses de modélisation. Un des cas limites extrêmes que l'on peut imaginer est la simulation en régime moléculaire libre. Dans ce régime, les particules de fluide ne se rencontrent presque plus et les collisions ont principalement lieu avec les parois solides environnantes. Or, ce régime d'écoulement semble difficilement modélisable à l'heure actuelle par la méthode de Boltzmann sur réseau, puisque l'opérateur de collision n'est plus exprimé en fonction de la viscosité du fluide, cette dernière n'étant pas vraiment définie lorsque les collisions gaz-gaz sont rares. L'analyse théorique permettrait alors de délimiter le régime de raréfaction au-delà duquel le processus de collision-propagation, qui constitue le cœur de la méthode de Boltzmann sur réseau, devient erroné.

- Une autre limite propre au régime raréfié (et pas uniquement aux mélanges gazeux) réside dans la modélisation du glissement aux parois. Un modèle d'ordre 1 de Maxwell (équation (1.3), p. 5) est appliqué actuellement. Il exprime la vitesse de glissement en fonction du gradient normal de la vitesse à la paroi et d'un coefficient de glissement calculé à partir d'une solution linéarisée de l'équation de Boltzmann [12]. Or, la modélisation du glissement formulée par Maxwell à partir des grandeurs macroscopiques dans des régimes fortement raréfiés n'a pas été rigoureusement vérifiée à notre connaissance. Le modèle de Cercignani-Lampis [242], basé sur une modélisation cinétique des interactions gaz-surface et non macroscopique, pourrait être une alternative plus pertinente.
- En plus du modèle employé, la détermination du coefficient de glissement reste un problème ouvert. Le coefficient de glissement du mélange C_1^{mix} a été théoriquement dérivé à partir de l'analyse d'un écoulement sur une plaque plane [12]; or sa valeur peut différer en fonction de la géométrie du solide [243, 244]. Sans même considérer le caractère multicomposant du fluide, on a montré à la section 1.2.3 (p. 4) que ce coefficient était fonction du matériau et du gaz considéré. Plus encore, l'équation (1.3) (p. 5) montre la dépendance entre ce coefficient et le TMAC, qui varie en fonction de la rugosité et même de la géométrie du solide. Ainsi, on s'attend à la même variabilité du coefficient pour les mélanges gazeux et la modélisation erronée du glissement aux parois pourrait affecter le comportement du fluide en régime raréfié, d'autant plus pour des géométries poreuses où la surface spécifique est grande. Une des solutions proposées pour déterminer les coefficients de glissement en régime fortement raréfié est de les optimiser par un algorithme de gradient afin de faire correspondre les profils de vitesse aux résultats de référence [245]. Bien que précise, cette méthode est limitée aux cas où des solutions de référence existent, ce qui n'est généralement pas le cas pour des milieux poreux complexes.

- Une autre simplification appliquée au modèle de glissement est l'approximation des coefficients de glissement de chaque espèce par le coefficient de glissement du mélange (p. 79). À la lecture de la revue de littérature, aucun coefficient de glissement spécifique n'a jusqu'à présent été mesuré expérimentalement ou déterminé théoriquement. Or, le coefficient de glissement d'un composant à l'état pur et son équivalent dans un mélange sont sans doute différents. À l'échelle de la particule de fluide, les particules entrées en collision spéculaire avec une paroi solide définissent le glissement à l'échelle macroscopique. Pour les mélanges gazeux, la surface de la paroi solide disponible pour une collision spéculaire d'une particule d'un gaz donné est réduite en raison de la présence de l'autre espèce qui occupe la surface restante. Dès lors, le coefficient de glissement de chaque composant sera certainement différent du coefficient de glissement du mélange.
- L'incertitude sur le glissement aux parois a un impact sur le modèle numérique. En effet, la condition aux limites CBBSR développée pour des géométries arbitraires dans l'Article 3 (section 6.3.5, p. 111) a été proposée pour imposer un glissement aux parois solides, mais ne retrouve pas précisément la valeur du coefficient de glissement du modèle de Maxwell. En effet, la combinaison d'une condition aux limites de glissement pour des surfaces non-planes avec la procédure de régularisation pour les régimes fortement raréfiés (p. 113) nécessiterait le développement de nouvelles expressions pour les temps de relaxation et les coefficients des conditions aux limites de glissement [223]. En raison des hypothèses de simplification sur le comportement de glissement du mélange gazeux, il n'a pas été jugé pertinent de développer une condition aux limites précise, puisque la vitesse de glissement retrouvée serait erronée. Toutefois, la vitesse de glissement obtenue par la condition aux limites implémentée est du même ordre de grandeur.
- Une dernière limitation sur le modèle numérique concerne le calcul d'une viscosité effective locale par un algorithme de lancer de rayons. D'après l'auteur original de l'algorithme [145], bien que l'approche ait été vérifiée pour des géométries cylindriques ou planes, celle-ci n'a pas l'air de bien capturer l'aspect non linéaire de la viscosité en régime fortement raréfié pour des géométries ouvertes, comme des milieux poreux. Une des problématiques pointées pouvant expliquer cet écart est l'invalidité de la relation entre la viscosité effective et le libre parcours moyen effectif (équation (6.24), p. 109) pour des géométries complexes et nécessiterait une étude approfondie.

Les limitations mentionnées ci-dessus soulignent l'incapacité à l'heure actuelle de généraliser la modélisation multicomposant raréfiée pour une géométrie et un mélange gazeux quelconques. Toutefois, en définissant les paramètres de simulation, les différents cas tests réalisés

montrent la capacité du modèle numérique développé à simuler des écoulements de mélanges gazeux et à capturer les phénomènes spécifiques au régime raréfié.

CHAPITRE 8 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

Ce chapitre résume l'ensemble des contributions et des clarifications apportées dans l'étude numérique des mélanges gazeux en régime raréfié. Par la suite, plusieurs pistes de recherche sont proposées pour des travaux futurs afin d'étoffer l'état de l'art et d'améliorer le modèle numérique.

8.1 Synthèse des travaux

Le travail présenté dans cette thèse a eu pour but de mieux comprendre les mécanismes de transport dans les écoulements de mélanges gazeux en régime raréfié. Pour l'atteindre, une solution numérique basée sur la méthode de Boltzmann sur réseau a été développée. Les adaptations numériques se sont basées sur des connaissances théoriques abondamment discutées dans la littérature.

Afin de choisir le modèle multicomposant le plus pertinent, une comparaison numérique a été réalisée entre deux modélisations de Boltzmann sur réseau pour les mélanges gazeux miscibles : une modélisation simple fluide, centrée sur la modélisation du mélange considéré comme un corps pur et une modélisation multifluide considérant l'évolution individuelle de chaque espèce composant le mélange. L'application des deux approches sur différents cas tests a mis en évidence les différences dans la modélisation selon la prépondérance des effets visqueux par rapport aux effets diffusifs, et ce, dans le régime hydrodynamique. L'existence de la séparation de la phase gazeuse en régime raréfié, conséquence d'une évolution progressivement individuelle des espèces composant le mélange gazeux, nous a incité à poursuivre nos développements numériques en nous basant sur la modélisation multifluide.

L'adaptation de ce modèle au régime raréfié a amené plusieurs contributions d'ordre numérique. Tout d'abord, les coefficients de transport pour un mélange gazeux ont été reliés à la raréfaction caractérisée par le nombre de Knudsen conformément à la théorie cinétique des gaz. Par la suite, la condition aux limites de glissement aux parois solides et la loi de paroi pour calculer une viscosité effective, initialement développées pour un fluide simple composant, ont été adaptées aux mélanges gazeux. Le modèle a d'abord été développé pour des domaines bidimensionnels et vérifiés pour des mélanges gazeux à deux composants pour différents degrés de raréfaction.

Dans la perspective de simuler des écoulements de mélange gazeux dans des géométries complexes caractéristiques, le modèle numérique a été généralisé aux domaines tridimensionnels

pour des géométries arbitraires. Une nouvelle façon de calculer la viscosité effective a été intégrée pour s'affranchir de la dimension empirique de la loi de paroi précédemment instaurée, conséquence du passage du fluide simple composant aux mélanges gazeux. La condition aux limites de glissement a été généralisée pour des surfaces non planes et le mécanisme de transport par diffusion moléculaire libre, dominant pour des écoulements très raréfiés, a été considéré. Le modèle tridimensionnel a été vérifié et validé par rapport à la littérature. Il est pertinent de mentionner que la validation de l'écoulement en régime raréfié de mélanges gazeux d'un modèle de Boltzmann sur réseau n'avait jamais été réalisée dans la littérature. Les simulations dans un milieu poreux montrent également pour la première fois la dépendance entre la géométrie, la perméabilité apparente du mélange et le degré de séparation de la phase gazeuse.

Le modèle de Boltzmann sur réseau proposé dans cette thèse peut être vu comme la fusion de deux axes de développement numérique. L'un se concentre sur la modélisation des mélanges gazeux en régime hydrodynamique, nécessitant le traitement dynamique des quantités de chaque espèce. Ce traitement a été réalisé en ajoutant une force de friction binaire matérialisant les interactions interespèces. L'autre adapte l'algorithme numérique afin d'intégrer les phénomènes de transport caractéristiques du régime raréfié en considérant un fluide simple composant. L'intégration des différents phénomènes physiques issus de ces deux axes dans l'algorithme initial de Boltzmann sur réseau permet d'approfondir la compréhension des écoulements multicomposant dans ces régimes d'écoulement.

8.2 Améliorations futures

Bien évidemment, la modélisation numérique proposée ici ne constitue en aucun cas une finalité dans l'étude des mélanges gazeux en régime raréfié. En effet, le régime d'écoulement étudié comporte des zones grises qui doivent encore être éclaircies. L'une des principales interrogations de la modélisation en régime raréfié demeure le traitement du glissement aux parois solides. La dépendance du coefficient de glissement par rapport à divers paramètres d'écoulement rend difficile l'utilisation d'une corrélation générale pour l'obtenir. De plus, la modélisation du glissement par un modèle macroscopique reste discutable lorsqu'on est en régime fortement raréfié. L'une des possibilités serait de coupler l'expression du glissement en Boltzmann sur réseau par des modèles moins phénoménologiques, que ce soit la DSMC [216, 246] ou bien la MD [247–249], et ce, pour des géométries arbitraires. Le couplage numérique pourrait également être étendu aux mélanges gazeux [250, 251]. Le modèle actuel propose une approche multifluide avec une condition aux limites de glissement de type CBBSR pour chaque espèce composant le mélange. L'une des faiblesses de cette modélisation

réside dans la méconnaissance de la proportion du glissement de chaque espèce par rapport à celui du mélange. Deux pistes de recherche sont envisagées dans le cas particulier de cette modélisation. La première consiste à développer un modèle théorique permettant de distribuer le glissement entre les différentes espèces en l'ajustant par rapport au glissement du mélange. La distribution du glissement pourrait être validée par un dispositif expérimental permettant de retrouver le glissement propre à chaque espèce : toutefois, notre méconnaissance du monde de l'expérimental ne nous permet pas de suggérer des solutions prometteuses. L'autre suggestion, plus radicale, serait de développer une nouvelle condition aux limites non contrainte par la discrétisation de l'espace des vitesses employée. On peut notamment citer l'imposition du glissement en calculant directement le glissement aux parois par une méthode numérique usuelle [50, 252], ou alors en imposant une vitesse fictive des parois dans le sens opposé. Le modèle peut également être amélioré en intégrant des phénomènes physiques supplémentaires qui peuvent devenir importants pour ces régimes d'écoulement. On peut penser par exemple aux effets thermiques qui occasionnent un saut de température au voisinage des parois solides et induisent un glissement additionnel en raison du gradient de température [6, 51]. L'ajout de ce phénomène supplémentaire permettrait de mieux comprendre la séparation de phase gazeuse par transpiration thermique dans les systèmes qui en bénéficient, comme les pompes de Knudsen [23]. D'autres effets qui ont été négligés dans ce travail, comme l'effet Soret-Dufour, ou bien le phénomène d'adsorption, sont autant d'améliorations futures potentielles. La compréhension des écoulements gazeux en régime raréfié est difficile en raison des phénomènes multiphysiques complexes et couplés entre eux. La modélisation numérique proposée dans cette thèse constitue un point de départ dans cette voie, avec la perspective d'être réutilisée et améliorée pour en faire un modèle de référence capable de simuler tout type de mélange gazeux en régime raréfié.

RÉFÉRENCES

- [1] P. A. Chambre et S. A. Schaaf, *Flow of rarefied gases*. Princeton : Princeton University Press, 1961.
- [2] S. Chapman et T. G. Cowling, *The mathematical theory of non-uniform gases : an account of the kinetic theory of viscosity, thermal conduction and diffusion in gases*. Cambridge : Cambridge University Press, 1970.
- [3] J. Pitakarnnop, S. Varoutis, D. Valougeorgis, S. Geoffroy, L. Baldas et S. Colin, “A novel experimental setup for gas microflows,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 8, pp. 57–72, 2010.
- [4] L. Szalmas, S. Colin et D. Valougeorgis, “Flow rate measurements of binary gas mixtures through long trapezoidal microchannels,” dans *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 362. IOP Publishing, 2012.
- [5] J. C. Maxwell, “VII. on stresses in rarefied gases arising from inequalities of temperature,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, pp. 231–256, 1879.
- [6] W.-M. Zhang, G. Meng et X. Wei, “A review on slip models for gas microflows,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 13, pp. 845–882, 2012.
- [7] J. Ren, Q. Zheng, P. Guo, S. Peng, Z. Wang et J. Du, “Pore-scale lattice Boltzmann simulation of two-component shale gas flow,” *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, vol. 61, pp. 46–70, 2019.
- [8] L. Szalmas, J. Pitakarnnop, S. Geoffroy, S. Colin et D. Valougeorgis, “Comparative study between computational and experimental results for binary rarefied gas flows through long microchannels,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 9, pp. 1103–1114, 2010.
- [9] S. Naris, D. Valougeorgis, D. Kalempa et F. Sharipov, “Gaseous mixture flow between two parallel plates in the whole range of the gas rarefaction,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 336, pp. 294–318, 2004.
- [10] P. J. Kerkhof et M. A. Geboers, “Analysis and extension of the theory of multicomponent fluid diffusion,” *Chemical Engineering Science*, vol. 60, pp. 3129–3167, 2005.
- [11] M. Vargas, S. Naris, D. Valougeorgis, S. Pantazis et K. Jousten, “Time-dependent rarefied gas flow of single gases and binary gas mixtures into vacuum,” *Vacuum*, vol. 109, pp. 385–396, 2014.

- [12] I. Ivchenko, S. Loyalka et R. Tompson, “Slip coefficients for binary gas mixtures,” *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 15, pp. 2375–2381, 1997.
- [13] N. Jeong, D. H. Choi et C.-L. Lin, “Prediction of Darcy–Forchheimer drag for microporous structures of complex geometry using the lattice Boltzmann method,” *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 16, 2006.
- [14] G. Yang et B. Weigand, “Investigation of the Klinkenberg effect in a micro/nanoporous medium by direct simulation Monte Carlo method,” *Physical Review Fluids*, vol. 3, 2018.
- [15] A. Nisar, N. Afzulpurkar, B. Mahaisavariya et A. Tuantranont, “MEMS-based micropumps in drug delivery and biomedical applications,” *Sensors and Actuators B : Chemical*, vol. 130, pp. 917–942, 2008.
- [16] S. Nakaye et H. Sugimoto, “Demonstration of a gas separator composed of Knudsen pumps,” *Vacuum*, vol. 125, pp. 154–164, 2016.
- [17] F. Amirouche, Y. Zhou et T. Johnson, “Current micropump technologies and their biomedical applications,” *Microsystem Technologies*, vol. 15, pp. 647–666, 2009.
- [18] F. Hossein-Babaei, M. Paknahad et V. Ghafarinia, “A miniature gas analyzer made by integrating a chemoresistor with a microchannel,” *Lab on a Chip*, vol. 12, pp. 1874–1880, 2012.
- [19] O. Görke, P. Pfeifer et K. Schubert, “Highly selective methanation by the use of a microchannel reactor,” *Catalysis Today*, vol. 110, pp. 132–139, 2005.
- [20] A. S. Kovvali et K. Sirkar, “Dendrimer liquid membranes : CO₂ separation from gas mixtures,” *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 40, pp. 2502–2511, 2001.
- [21] C.-M. Ho et Y.-C. Tai, “Micro-electro-mechanical-systems (MEMS) and fluid flows,” *Annual Review of Fluid Mechanics*, vol. 30, pp. 579–612, 1998.
- [22] T. Gerlach, “Pumping gases by a silicon micro pump with dynamic passive valves,” dans *Proceedings of International Solid State Sensors and Actuators Conference (Transducers’ 97)*, vol. 1. IEEE, 1997, pp. 357–360.
- [23] X. Wang, T. Su, W. Zhang, Z. Zhang et S. Zhang, “Knudsen pumps : A review,” *Microsystems & Nanoengineering*, vol. 6, pp. 1–28, 2020.
- [24] Y. Takahashi, J. Okajima, Y. Iga, A. Komiya, W.-S. Fu et S. Maruyama, “Study of supersonic micro-channel for cooling electronic devices,” dans *International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels*. American Society of Mechanical Engineers, 2013.

- [25] D. Chai et X. Li, “Rarefied gas transport in heterogeneous shale matrix using a practical apparent permeability model and fuzzy statistical method,” *Journal of Petroleum Science and Engineering*, vol. 206, 2021.
- [26] J. Wang, L. Chen, Q. Kang et S. S. Rahman, “The lattice Boltzmann method for isothermal micro-gaseous flow and its application in shale gas flow : a review,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 95, pp. 94–108, 2016.
- [27] E. H. Kennard, *Kinetic theory of gases*. New York and London : McGraw-Hill Book Company, Inc., 1938.
- [28] T. Engel et P. J. Reid, *Thermodynamics, statistical thermodynamics, and kinetics*. Harlow : Pearson Education Limited, 2010.
- [29] M. Gad-el Hak, “Comments on “critical view on new results in micro-fluid mechanics”,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 46, pp. 3941–3945, 2003.
- [30] G. Fryer, “A theory of gas flow through capillary tubes,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, vol. 293, pp. 329–341, 1966.
- [31] A. Kundt et E. Warburg, “Ueber reibung und wärmeleitung verdünnter gase,” *Annalen der Physik*, vol. 232, pp. 177–211, 1875.
- [32] M. Knudsen, “Eine revision der gleichgewichtsbedingung der gase. thermische molekularströmung,” *Annalen der Physik*, vol. 336, pp. 205–229, 1909.
- [33] J. Lachaud, I. Cozmuta et N. N. Mansour, “Multiscale approach to ablation modeling of phenolic impregnated carbon ablators,” *Journal of Spacecraft and Rockets*, vol. 47, pp. 910–921, 2010.
- [34] F. Panerai, T. Cochell, A. Martin et J. D. White, “Experimental measurements of the high-temperature oxidation of carbon fibers,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 136, pp. 972–986, 2019.
- [35] C. White, T. J. Scanlon et R. E. Brown, “Permeability of ablative materials under rarefied gas conditions,” *Journal of Spacecraft and Rockets*, vol. 53, pp. 134–142, 2016.
- [36] A. Borner, F. Panerai et N. N. Mansour, “High temperature permeability of fibrous materials using direct simulation Monte Carlo,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 106, pp. 1318–1326, 2017.
- [37] F. Sharipov, “Data on the velocity slip and temperature jump on a gas-solid interface,” *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 40, 2011.
- [38] A. Agrawal et S. Prabhu, “Survey on measurement of tangential momentum accommodation coefficient,” *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 26, pp. 634–645, 2008.

- [39] R. Deissler, “An analysis of second-order slip flow and temperature-jump boundary conditions for rarefied gases,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 7, pp. 681–694, 1964.
- [40] N. G. Hadjiconstantinou, “Validation of a second-order slip model for dilute gas flows,” *Microscale Thermophysical Engineering*, vol. 9, pp. 137–153, 2005.
- [41] S. Colin, P. Lalonde et R. Caen, “Validation of a second-order slip flow model in rectangular microchannels,” *Heat Transfer Engineering*, vol. 25, pp. 23–30, 2004.
- [42] A. Sreekanth, “Transition flow through short circular tubes,” *The Physics of Fluids*, vol. 8, pp. 1951–1956, 1965.
- [43] B. Porodnov, P. Suetin, S. Borisov et V. Akinshin, “Experimental investigation of rarefied gas flow in different channels,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 64, pp. 417–438, 1974.
- [44] E. B. Arkilic, “Measurement of the mass flow and tangential momentum accommodation coefficient in silicon micromachined channels,” Thèse de doctorat, Massachusetts Institute of Technology, 1997.
- [45] T. Ewart, P. Perrier, I. A. Graur et J. G. Méolans, “Mass flow rate measurements in a microchannel, from hydrodynamic to near free molecular regimes,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 584, pp. 337–356, 2007.
- [46] V. Hemadri, A. Agrawal et U. Bhandarkar, “Determination of tangential momentum accommodation coefficient and slip coefficients for rarefied gas flow in a microchannel,” *Sādhanā*, vol. 43, pp. 1–7, 2018.
- [47] J. Reinhold, T. Veltzke, B. Wells, J. Schneider, F. Meierhofer, L. C. Ciacchi, A. Chaffee et J. Thöming, “Molecular dynamics simulations on scattering of single Ar, N₂, and CO₂ molecules on realistic surfaces,” *Computers & Fluids*, vol. 97, pp. 31–39, 2014.
- [48] M. Barisik et A. Beskok, “Molecular dynamics simulations of shear-driven gas flows in nano-channels,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 11, pp. 611–622, 2011.
- [49] A. Beskok et G. E. Karniadakis, “Report : a model for flows in channels, pipes, and ducts at micro and nano scales,” *Microscale Thermophysical Engineering*, vol. 3, pp. 43–77, 1999.
- [50] M. Watari, “Velocity slip and temperature jump simulations by the three-dimensional thermal finite-difference lattice Boltzmann method,” *Physical Review E*, vol. 79, 2009.
- [51] N. Verma, D. Mewes et A. Luke, “Lattice Boltzmann study of velocity, temperature, and concentration in micro-reactors,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 53, pp. 3175–3185, 2010.

- [52] H. Gijare, A. Bhagat et N. Dongari, “Effect of Knudsen layer on the heat transfer in hypersonic rarefied gas flows,” *International Journal of Thermal Sciences*, vol. 142, pp. 134–141, 2019.
- [53] J.-M. Vanson, F.-X. Coudert, M. Klotz et A. Boutin, “Kinetic accessibility of porous material adsorption sites studied through the lattice Boltzmann method,” *Langmuir*, vol. 33, pp. 1405–1411, 2017.
- [54] Z. Peng, S. Liu, Y. Li et Q. Yao, “Apparent permeability prediction of coal matrix with generalized lattice Boltzmann model considering non-Darcy effect,” *Geofluids*, 2020.
- [55] H. Zuo, S.-C. Deng et H.-B. Li, “Boundary scheme for lattice boltzmann modeling of micro-scale gas flow in organic-rich pores considering surface diffusion,” *Chinese Physics B*, vol. 28, 2019.
- [56] L. Liu, J. Yao, L. Zhang, S. An, J. Zhao et H. Sun, “REV-scale simulation of micro-fractured unconventional gas reservoir,” *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, vol. 48, pp. 100–110, 2017.
- [57] J. Wang, L. Chen, Q. Kang et S. S. Rahman, “Apparent permeability prediction of organic shale with generalized lattice Boltzmann model considering surface diffusion effect,” *Fuel*, vol. 181, pp. 478–490, 2016.
- [58] J.-M. Tucny, D. Vidal, F. Drolet et F. Bertrand, “Impact of multilayering on the filtration performance of clean air filter media,” *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, vol. 98, pp. 2632–2647, 2020.
- [59] L. Chen, Q. Kang, Q. Tang, B. A. Robinson, Y.-L. He et W.-Q. Tao, “Pore-scale simulation of multicomponent multiphase reactive transport with dissolution and precipitation,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 85, pp. 935–949, 2015.
- [60] J. Gao, H. Xing, Z. Tian, J. K. Pearce, M. Sedek, S. D. Golding et V. Rudolph, “Reactive transport in porous media for CO₂ sequestration : pore scale modeling using the lattice Boltzmann method,” *Computers & Geosciences*, vol. 98, pp. 9–20, 2017.
- [61] L. Chen, R. Zhang, T. Min, Q. Kang et W. Tao, “Pore-scale study of effects of macroscopic pores and their distributions on reactive transport in hierarchical porous media,” *Chemical Engineering Journal*, vol. 349, pp. 428–437, 2018.
- [62] D. Vidal, C. Ridgway, G. Pianet, J. Schoelkopf, R. Roy et F. Bertrand, “Effect of particle size distribution and packing compression on fluid permeability as predicted by lattice Boltzmann simulations,” *Computers & Chemical Engineering*, vol. 33, pp. 256–266, 2009.

- [63] S. Ergun, "Fluid flow through packed columns," *Chemical Engineering Progress*, vol. 48, pp. 89–94, 1952.
- [64] P. C. Carman, "Permeability of saturated sands, soils and clays," *The Journal of Agricultural Science*, vol. 29, pp. 262–273, 1939.
- [65] A. Nabovati, E. W. Llewellyn et A. C. Sousa, "A general model for the permeability of fibrous porous media based on fluid flow simulations using the lattice Boltzmann method," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, pp. 860–869, 2009.
- [66] L. Klinkenberg, "The permeability of porous media to liquids and gases," dans *Drilling and Production Practice*. OnePetro, 1941.
- [67] L. Chen, Q. Kang, R. Pawar, Y.-L. He et W.-Q. Tao, "Pore-scale prediction of transport properties in reconstructed nanostructures of organic matter in shales," *Fuel*, vol. 158, pp. 650–658, 2015.
- [68] J. Wang, Q. Kang, Y. Wang, R. Pawar et S. S. Rahman, "Simulation of gas flow in micro-porous media with the regularized lattice Boltzmann method," *Fuel*, vol. 205, pp. 232–246, 2017.
- [69] L. Vienne, "Simulation of multi-component flows by the lattice Boltzmann method and application to the viscous fingering instability," Thèse de doctorat, Conservatoire national des arts et métiers-CNAM, 2019.
- [70] D. Valougeorgis, M. Vargas et S. Naris, "Analysis of gas separation, conductance and equivalent single gas approach for binary gas mixture flow expansion through tubes of various lengths into vacuum," *Vacuum*, vol. 128, pp. 1–8, 2016.
- [71] M. Sabouri et M. Darbandi, "Numerical study of species separation in rarefied gas mixture flow through micronozzles using DSMC," *Physics of Fluids*, vol. 31, 2019.
- [72] M.-Y. Wey, H.-H. Chen, Y.-T. Lin et H.-H. Tseng, "Thin carbon hollow fiber membrane with Knudsen diffusion for hydrogen/alkane separation : effects of hollow fiber module design and gas flow mode," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 45, pp. 7290–7302, 2020.
- [73] J. Ye, J. Yang, J. Zheng, X. Ding, I. Wong, W. Li et C. Chen, "A multi-scale flow analysis in hydrogen separation membranes using a coupled DSMC-SPH method," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, pp. 894–902, 2012.
- [74] E. Camara, P. Breuil, D. Briand, L. Guillot, C. Pijolat et N. De Rooij, "Micro gas preconcentrator in porous silicon filled with a carbon absorbent," *Sensors and Actuators B : Chemical*, vol. 148, pp. 610–619, 2010.

- [75] A. Hassanvand, M. B. Gerdroodbary, R. Moradi et Y. Amini, “Application of Knudsen thermal force for detection of inert gases,” *Results in Physics*, vol. 9, pp. 351–358, 2018.
- [76] T. Zhang, S. Sun et H. Song, “Flow mechanism and simulation approaches for shale gas reservoirs : a review,” *Transport in Porous Media*, vol. 126, pp. 655–681, 2019.
- [77] Z. Guo et C. Shu, *Lattice Boltzmann method and its application in engineering*. Singapore : World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2013, vol. 3.
- [78] X. Shan et X. He, “Discretization of the velocity space in the solution of the Boltzmann equation,” *Physical Review Letters*, vol. 80, p. 65, 1998.
- [79] P. L. Bhatnagar, E. P. Gross et M. Krook, “A model for collision processes in gases. I. small amplitude processes in charged and neutral one-component systems,” *Physical Review*, vol. 94, p. 511, 1954.
- [80] P. Lallemand et L.-S. Luo, “Theory of the lattice Boltzmann method : dispersion, dissipation, isotropy, galilean invariance, and stability,” *Physical Review E*, vol. 61, 2000.
- [81] D. d’Humières, “Generalized lattice Boltzmann equations,” *Rarefied Gas Dynamics*, 1992.
- [82] S. Ansumali et I. V. Karlin, “Kinetic boundary conditions in the lattice Boltzmann method,” *Physical Review E*, vol. 66, 2002.
- [83] S. Succi, “Mesoscopic modeling of slip motion at fluid-solid interfaces with heterogeneous catalysis,” *Physical Review Letters*, vol. 89, 2002.
- [84] Z. Chai, B. Shi, Z. Guo et J. Lu, “Gas flow through square arrays of circular cylinders with Klinkenberg effect : a lattice Boltzmann study,” *Communications in Computational Physics*, vol. 8, 2010.
- [85] Z. Guo, B. Shi, T. Zhao et C. Zheng, “Discrete effects on boundary conditions for the lattice Boltzmann equation in simulating microscale gas flows,” *Physical Review E*, vol. 76, 2007.
- [86] F. Verhaeghe, L.-S. Luo et B. Blanpain, “Lattice Boltzmann modeling of microchannel flow in slip flow regime,” *Journal of Computational Physics*, vol. 228, pp. 147–157, 2009.
- [87] Z. Guo, C. Zheng et B. Shi, “Lattice Boltzmann equation with multiple effective relaxation times for gaseous microscale flow,” *Physical Review E*, vol. 77, 2008.
- [88] Z. Deng, Y. Chen et C. Shao, “Gas flow through rough microchannels in the transition flow regime,” *Physical Review E*, vol. 93, 2016.

- [89] C. J. Landry, M. Prodanović et P. Eichhubl, “Direct simulation of supercritical gas flow in complex nanoporous media and prediction of apparent permeability,” *International Journal of Coal Geology*, vol. 159, pp. 120–134, 2016.
- [90] M. Ho, J. G. Pérez, M. Reggio et J.-Y. Trépanier, “Permeability calculation of rarefied gas flows through 2D porous structures using the lattice Boltzmann method,” *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, vol. 113, pp. 43–49, 2019.
- [91] H. Rostamzadeh, M. Salimi et M. Taeibi-Rahni, “Pore-scale modeling of rarefied gas flow in fractal micro-porous media, using lattice Boltzmann method (LBM),” *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 135, pp. 1931–1942, 2019.
- [92] Z. Guo et C. Zheng, “Analysis of lattice Boltzmann equation for microscale gas flows : relaxation times, boundary conditions and the Knudsen layer,” *International Journal of Computational Fluid Dynamics*, vol. 22, pp. 465–473, 2008.
- [93] J.-M. Tucny, D. Vidal, S. Leclaire et F. Bertrand, “Comparison of existing and extended boundary conditions for the simulation of rarefied gas flows using the lattice Boltzmann method,” *International Journal of Modern Physics C*, vol. 31, 2020.
- [94] Q. Li, Y. He, G. Tang et W. Tao, “Lattice Boltzmann modeling of microchannel flows in the transition flow regime,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 10, pp. 607–618, 2011.
- [95] V. K. Michalis, A. N. Kalarakis, E. D. Skouras et V. N. Burganos, “Rarefaction effects on gas viscosity in the Knudsen transition regime,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 9, pp. 847–853, 2010.
- [96] J. Xie, M. K. Borg, L. Gibelli, O. Henrich, D. A. Lockerby et J. M. Reese, “Effective mean free path and viscosity of confined gases,” *Physics of Fluids*, vol. 31, 2019.
- [97] N. Dongari, Y. Zhang et J. M. Reese, “Molecular free path distribution in rarefied gases,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 44, 2011.
- [98] R. V. Abramov, “Gas near a wall : shortened mean free path, reduced viscosity, and the manifestation of the Knudsen layer in the Navier–Stokes solution of a shear flow,” *Journal of Nonlinear Science*, vol. 28, pp. 833–845, 2018.
- [99] D. Stops, “The mean free path of gas molecules in the transition regime,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 3, 1970.
- [100] N. Dongari, Y. Zhang et J. M. Reese, “Modeling of Knudsen layer effects in micro/nanoscale gas flows,” *Journal of Fluids Engineering*, vol. 133, 2011.
- [101] Z. Guo, T. Zhao et Y. Shi, “Physical symmetry, spatial accuracy, and relaxation time of the lattice Boltzmann equation for microgas flows,” *Journal of Applied physics*, vol. 99, 2006.

- [102] E. J. Arlemark, S. K. Dadzie et J. M. Reese, “An extension to the Navier–Stokes equations to incorporate gas molecular collisions with boundaries,” *Journal of Heat Transfer*, vol. 132, 2010.
- [103] C. Bosanquet, “British TA Report BR-507,” 1944.
- [104] L. Chen, L. Zhang, Q. Kang, H. S. Viswanathan, J. Yao et W. Tao, “Nanoscale simulation of shale transport properties using the lattice boltzmann method : permeability and diffusivity,” *Scientific Reports*, vol. 5, pp. 1–8, 2015.
- [105] A. Kalarakis, V. Michalis, E. Skouras et V. Burganos, “Mesoscopic simulation of rarefied flow in narrow channels and porous media,” *Transport in Porous Media*, vol. 94, pp. 385–398, 2012.
- [106] B. K. Bessire, S. A. Lahankar et T. K. Minton, “Pyrolysis of phenolic impregnated carbon ablator (PICA),” *ACS Applied Materials & Interfaces*, vol. 7, pp. 1383–1395, 2015.
- [107] Y. Pan et S.-C. Kong, “Simulation of biomass particle evolution under pyrolysis conditions using lattice Boltzmann method,” *Combustion and Flame*, vol. 178, pp. 21–34, 2017.
- [108] K. Yamamoto, X. He et G. D. Doolen, “Simulation of combustion field with lattice Boltzmann method,” *Journal of Statistical Physics*, vol. 107, pp. 367–383, 2002.
- [109] M. Wang et W. Zhu, “Pore–scale study of heterogeneous chemical reaction for ablation of carbon fibers using the lattice Boltzmann method,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 126, pp. 1222–1239, 2018.
- [110] A. S. Joshi, K. N. Grew, A. A. Peracchio et W. K. Chiu, “Lattice Boltzmann modeling of 2D gas transport in a solid oxide fuel cell anode,” *Journal of Power Sources*, vol. 164, pp. 631–638, 2007.
- [111] A. S. Joshi, A. A. Peracchio, K. N. Grew et W. K. Chiu, “Lattice Boltzmann method for continuum, multi-component mass diffusion in complex 2D geometries,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 40, 2007.
- [112] Z.-X. Tong, Y.-L. He, L. Chen et T. Xie, “A multi-component lattice Boltzmann method in consistent with Stefan–Maxwell equations : derivation, validation and application in porous medium,” *Computers & Fluids*, vol. 105, pp. 155–165, 2014.
- [113] A. S. Joshi, K. N. Grew, J. R. Izzo, A. A. Peracchio et W. K. Chiu, “Lattice Boltzmann modeling of three-dimensional, multicomponent mass diffusion in a solid oxide fuel cell anode,” *Journal of Fuel Cell Science and Technology*, vol. 7, 2010.

- [114] A. S. Joshi, A. A. Peracchio, K. N. Grew et W. K. Chiu, “Lattice Boltzmann method for multi-component, non-continuum mass diffusion,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 40, 2007.
- [115] J. Young et B. Todd, “Modelling of multi-component gas flows in capillaries and porous solids,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 48, pp. 5338–5353, 2005.
- [116] W. Pollard et R. D. Present, “On gaseous self-diffusion in long capillary tubes,” *Physical Review*, vol. 73, 1948.
- [117] N. Dongari, A. Sharma et F. Durst, “Pressure-driven diffusive gas flows in micro-channels : from the Knudsen to the continuum regimes,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 6, pp. 679–692, 2009.
- [118] S. H. Kim, H. Pitsch et I. D. Boyd, “Lattice Boltzmann modeling of multicomponent diffusion in narrow channels,” *Physical Review E*, vol. 79, 2009.
- [119] Q. Ma et Z. Chen, “Lattice Boltzmann simulation of multicomponent noncontinuum diffusion in fractal porous structures,” *Physical Review E*, vol. 92, 2015.
- [120] S. Bennett, P. Asinari et P. J. Dellar, “A lattice Boltzmann model for diffusion of binary gas mixtures that includes diffusion slip,” *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, vol. 69, pp. 171–189, 2012.
- [121] B. Hu et J. Wang, “Fractal microstructure effects on effective gas diffusivity of a nanoporous medium based on pore-scale numerical simulations with lattice Boltzmann method,” *Physical Review E*, vol. 104, 2021.
- [122] V. Sofonea et R. F. Sekerka, “BGK models for diffusion in isothermal binary fluid systems,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 299, pp. 494–520, 2001.
- [123] L. Sirovich, “Kinetic modeling of gas mixtures,” *The Physics of Fluids*, vol. 5, pp. 908–918, 1962.
- [124] L.-S. Luo et S. S. Girimaji, “Theory of the lattice Boltzmann method : two-fluid model for binary mixtures,” *Physical Review E*, vol. 67, 2003.
- [125] B. B. Hamel, “Kinetic model for binary gas mixtures,” *The Physics of Fluids*, vol. 8, pp. 418–425, 1965.
- [126] P. Asinari, “Viscous coupling based lattice Boltzmann model for binary mixtures,” *Physics of Fluids*, vol. 17, 2005.
- [127] P. Andries, K. Aoki et B. Perthame, “A consistent BGK-type model for gas mixtures,” *Journal of Statistical Physics*, vol. 106, pp. 993–1018, 2002.

- [128] P. Asinari, “Multiple-relaxation-time lattice Boltzmann scheme for homogeneous mixture flows with external force,” *Physical Review E*, vol. 77, 2008.
- [129] P. Asinari et L.-S. Luo, “A consistent lattice Boltzmann equation with baroclinic coupling for mixtures,” *Journal of Computational Physics*, vol. 227, pp. 3878–3895, 2008.
- [130] Z. Guo, P. Asinari et C. Zheng, “Lattice Boltzmann equation for microscale gas flows of binary mixtures,” *Physical Review E*, vol. 79, 2009.
- [131] L. Wang, Z. Xu et Z. Guo, “Lattice Boltzmann simulation of separation phenomenon in a binary gaseous flow through a microchannel,” *Journal of Applied Physics*, vol. 120, 2016.
- [132] P. J. Kerkhof et M. A. Geboers, “Toward a unified theory of isotropic molecular transport phenomena,” *AIChE Journal*, vol. 51, pp. 79–121, 2005.
- [133] R. R. Remick et C. J. Geankoplis, “Binary diffusion of gases in capillaries in the transition region between Knudsen and molecular diffusion,” *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, vol. 12, pp. 214–220, 1973.
- [134] X. Yu, Z. Guo et B. Shi, “Numerical study of cross diffusion effects on double diffusive convection with lattice Boltzmann method,” dans *International Conference on Computational Science*. Springer, 2007, pp. 810–817.
- [135] Q. Ren et C. L. Chan, “Numerical study of double-diffusive convection in a vertical cavity with Soret and Dufour effects by lattice Boltzmann method on GPU,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 93, pp. 538–553, 2016.
- [136] S. Lee et J. Yang, “Modeling of Darcy–Forchheimer drag for fluid flow across a bank of circular cylinders,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 40, pp. 3149–3155, 1997.
- [137] P. Asinari, “Asymptotic analysis of multiple-relaxation-time lattice Boltzmann schemes for mixture modeling,” *Computers & Mathematics with Applications*, vol. 55, pp. 1392–1407, 2008.
- [138] L. Vienne, S. Marié et F. Grasso, “Lattice Boltzmann method for miscible gases : a forcing-term approach,” *Physical Review E*, vol. 100, 2019.
- [139] P. Asinari, “Semi-implicit-linearized multiple-relaxation-time formulation of lattice Boltzmann schemes for mixture modeling,” *Physical Review E*, vol. 73, 2006.
- [140] J. O. Hirschfelder, C. F. Curtiss et R. B. Bird, *Molecular theory of gases and liquids*. New York : John Wiley & Sons, 1964.
- [141] Y. L. Klimontovich, “The unified description of kinetic and hydrodynamic processes in gases and plasmas,” *Physics Letters A*, vol. 170, pp. 434–438, 1992.

- [142] Y.-l. Zhao et Z.-m. Wang, “Prediction of apparent permeability of porous media based on a modified lattice Boltzmann method,” *Journal of Petroleum Science and Engineering*, vol. 174, pp. 1261–1268, 2019.
- [143] M. Ho, S. Leclaire, M. Reggio et J.-Y. Trépanier, “Stochastic effects of 2D random arrays of cylinders on rarefied gas permeability using the lattice Boltzmann method,” *Transport in Porous Media*, vol. 136, pp. 607–637, 2021.
- [144] J. Zhao, J. Yao, A. Li, M. Zhang, L. Zhang, Y. Yang et H. Sun, “Simulation of microscale gas flow in heterogeneous porous media based on the lattice Boltzmann method,” *Journal of Applied Physics*, vol. 120, 2016.
- [145] J.-M. Tucny, “Modélisation des écoulements de gaz raréfiés au travers de filtres fibreux par la méthode de Boltzmann sur réseau,” Thèse de doctorat, Polytechnique Montréal, 2020.
- [146] J. Pitakarnnop, “Analyse expérimentale et simulation numérique d’écoulements raréfiés de gaz simples et de mélanges gazeux dans les microcanaux,” Thèse de doctorat, Toulouse, INSA, 2009.
- [147] L. Szalmas, “Flows of gas mixtures in microchannels,” Thèse de doctorat, Université de Toulouse, 2012.
- [148] R. Machado, “Numerical simulations of surface reaction in porous media with lattice Boltzmann,” *Chemical Engineering Science*, vol. 69, pp. 628–643, 2012.
- [149] Q. Kang, P. C. Lichtner, H. S. Viswanathan et A. I. Abdel-Fattah, “Pore scale modeling of reactive transport involved in geologic CO₂ sequestration,” *Transport in Porous Media*, vol. 82, pp. 197–213, 2010.
- [150] I. Belot, D. Vidal, R. Greiner, M. Votsmeier, R. E. Hayes et F. Bertrand, “Impact of washcoat distribution on the catalytic performance of gasoline particulate filters as predicted by lattice Boltzmann simulations,” *Chemical Engineering Journal*, vol. 406, 2020.
- [151] C. Bresolin et A. Oliveira, “An algorithm based on collision theory for the lattice Boltzmann simulation of isothermal mass diffusion with chemical reaction,” *Computer Physics Communications*, vol. 183, pp. 2542–2549, 2012.
- [152] T. W. Willingham, C. J. Werth et A. J. Valocchi, “Evaluation of the effects of porous media structure on mixing-controlled reactions using pore-scale modeling and micromodel experiments,” *Environmental Science & Technology*, vol. 42, pp. 3185–3193, 2008.
- [153] S. Arcidiacono, J. Mantzaras et I. Karlin, “Lattice Boltzmann simulation of catalytic reactions,” *Physical Review E*, vol. 78, 2008.

- [154] Q. Xu, W. Long, H. Jiang, C. Zan, J. Huang, X. Chen et L. Shi, “Pore-scale modelling of the coupled thermal and reactive flow at the combustion front during crude oil in-situ combustion,” *Chemical Engineering Journal*, vol. 350, pp. 776–790, 2018.
- [155] L. Chen, Q. Kang, Y.-L. He et W.-Q. Tao, “Pore-scale simulation of coupled multiple physicochemical thermal processes in micro reactor for hydrogen production using lattice Boltzmann method,” *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, pp. 13 943–13 957, 2012.
- [156] X. He et L.-S. Luo, “Lattice Boltzmann model for the incompressible Navier–Stokes equation,” *Journal of Statistical Physics*, vol. 88, pp. 927–944, 1997.
- [157] T. Krüger, H. Kusumaatmaja, A. Kuzmin, O. Shardt, G. Silva et E. M. Viggen, *The lattice Boltzmann method*. Switzerland : Springer International Publishing, 2017.
- [158] N. I. Prasianakis et I. V. Karlin, “Lattice Boltzmann method for simulation of compressible flows on standard lattices,” *Physical Review E*, vol. 78, 2008.
- [159] A.-G. Xu, G.-C. Zhang, Y.-B. Gan, F. Chen et X.-J. Yu, “Lattice Boltzmann modeling and simulation of compressible flows,” *Frontiers of Physics*, vol. 7, pp. 582–600, 2012.
- [160] X. Shan et H. Chen, “Lattice Boltzmann model for simulating flows with multiple phases and components,” *Physical Review E*, vol. 47, 1993.
- [161] X. Shan et G. Doolen, “Multicomponent lattice Boltzmann model with interparticle interaction,” *Journal of Statistical Physics*, vol. 81, pp. 379–393, 1995.
- [162] —, “Diffusion in a multicomponent lattice Boltzmann equation model,” *Physical Review E*, vol. 54, 1996.
- [163] L.-S. Luo et S. S. Girimaji, “Lattice Boltzmann model for binary mixtures,” *Physical Review E*, vol. 66, 2002.
- [164] M. E. McCracken et J. Abraham, “Lattice Boltzmann methods for binary mixtures with different molecular weights,” *Physical Review E*, vol. 71, 2005.
- [165] P. Asinari, “Multi-scale analysis of heat and mass transfer in mini/micro-structures,” Thèse de doctorat, Politecnico di Torino, 2005.
- [166] S. Arcidiacono, J. Mantzaras, S. Ansumali, I. Karlin, C. Frouzakis et K. Boulouchos, “Simulation of binary mixtures with the lattice Boltzmann method,” *Physical Review E*, vol. 74, 2006.
- [167] S. Arcidiacono, S. Ansumali, I. V. Karlin, J. Mantzaras et K. Boulouchos, “Entropic lattice Boltzmann method for simulation of binary mixtures,” *Mathematics and Computers in Simulation*, vol. 72, pp. 79–83, 2006.

- [168] S. Arcidiacono, I. Karlin, J. Mantzaras et C. Frouzakis, “Lattice Boltzmann model for the simulation of multicomponent mixtures,” *Physical Review E*, vol. 76, 2007.
- [169] J. Kang, N. I. Prasianakis et J. Mantzaras, “Thermal multicomponent lattice Boltzmann model for catalytic reactive flows,” *Physical Review E*, vol. 89, 2014.
- [170] —, “Lattice Boltzmann model for thermal binary–mixture gas flows,” *Physical Review E*, vol. 87, 2013.
- [171] Z. Guo, C. Zheng et B. Shi, “Discrete lattice effects on the forcing term in the lattice Boltzmann method,” *Physical Review E*, vol. 65, 2002.
- [172] S. Leclaire, N. Pellerin, M. Reggio et J.-Y. Trépanier, “Enhanced equilibrium distribution functions for simulating immiscible multiphase flows with variable density ratios in a class of lattice Boltzmann models,” *International Journal of Multiphase Flow*, vol. 57, pp. 159–168, 2013.
- [173] S. Leclaire, K. Abahri, R. Belarbi et R. Bennacer, “Modeling of static contact angles with curved boundaries using a multiphase lattice Boltzmann method with variable density and viscosity ratios,” *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, vol. 82, pp. 451–470, 2016.
- [174] P. Asinari, “Lattice Boltzmann scheme for mixture modeling : analysis of the continuum diffusion regimes recovering Maxwell–Stefan model and incompressible Navier–Stokes equations,” *Physical Review E*, vol. 80, 2009.
- [175] L. Vienne, “Simulation of multi-component flows by the lattice Boltzmann method and application to the viscous fingering instability,” Thèse de doctorat, Conservatoire national des arts et metiers - CNAM, 2019.
- [176] S. Leclaire, M. El-Hachem, J.-Y. Trépanier et M. Reggio, “High order spatial generalization of 2D and 3D isotropic discrete gradient operators with fast evaluation on GPUs,” *Journal of Scientific Computing*, vol. 59, pp. 545–573, 2014.
- [177] J. Latt, B. Chopard, O. Malaspinas, M. Deville et A. Michler, “Straight velocity boundaries in the lattice Boltzmann method,” *Physical Review E*, vol. 77, 2008.
- [178] D. d’Humières, “Multiple–relaxation–time lattice Boltzmann models in three dimensions,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 360, pp. 437–451, 2002.
- [179] P. F. Zito, A. Caravella, A. Brunetti, E. Drioli et G. Barbieri, “Discrimination among gas translation, surface and Knudsen diffusion in permeation through zeolite membranes,” *Journal of Membrane Science*, vol. 564, pp. 166–173, 2018.

- [180] Z. Liehui, S. Baochao, Z. Yulong et G. Zhaoli, “Review of micro seepage mechanisms in shale gas reservoirs,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 139, pp. 144–179, 2019.
- [181] N. Gupta, E. Fathi et F. Belyadi, “Effects of nano-pore wall confinements on rarefied gas dynamics in organic rich shale reservoirs,” *Fuel*, vol. 220, pp. 120–129, 2018.
- [182] S. Wang, A. A. Lukyanov et Y.-S. Wu, “Second-order gas slippage model for the Klinkenberg effect of multicomponent gas at finite Knudsen numbers up to 1,” *Fuel*, vol. 235, pp. 1275–1286, 2019.
- [183] E. Stern, I. Nompelis, T. E. Schwartzentruber et G. V. Candler, “Microscale simulations of porous TPS materials : application to permeability,” dans *11th AIAA/ASME Joint Thermophysics and Heat Transfer Conference*, 2014.
- [184] S. Poovathingal, E. C. Stern, I. Nompelis, T. E. Schwartzentruber et G. V. Candler, “Nonequilibrium flow through porous thermal protection materials, Part II : oxidation and pyrolysis,” *Journal of Computational Physics*, vol. 380, pp. 427–441, 2019.
- [185] J. Ross-Jones, M. Gaedtke, S. Sonnicks, M. Rädle, H. Nirschl et M. J. Krause, “Conjugate heat transfer through nano scale porous media to optimize vacuum insulation panels with lattice Boltzmann methods,” *Computers & Mathematics with Applications*, vol. 77, pp. 209–221, 2019.
- [186] A. Beskok, G. E. Karniadakis et W. Trimmer, “Rarefaction and compressibility effects in gas microflows,” *Journal of Fluids Engineering*, vol. 118, pp. 448–456, 1996.
- [187] G. Karniadakis, A. Beskok et N. Aluru, *Microflows and nanoflows : fundamentals and simulation*. New York : Springer Science & Business Media, 2006, vol. 29.
- [188] G. Tang, W. Tao et Y. He, “Lattice Boltzmann method for gaseous microflows using kinetic theory boundary conditions,” *Physics of Fluids*, vol. 17, 2005.
- [189] Y. Zhang, R. Qin, Y. Sun, R. W. Barber et D. Emerson, “Gas flow in microchannels—a lattice Boltzmann method approach,” *Journal of Statistical Physics*, vol. 121, pp. 257–267, 2005.
- [190] Y. Yuan et S. Rahman, “Extended application of lattice Boltzmann method to rarefied gas flow in micro-channels,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 463, pp. 25–36, 2016.
- [191] R. Gao, S. O’Byrne, F. Sharipov et J.-L. Liow, “Experimental investigation of the separation of binary gaseous mixtures flowing through a capillary tube,” *Physics of Fluids*, vol. 32, 2020.
- [192] S. Takata, H. Sugimoto et S. Kosuge, “Gas separation by means of the Knudsen compressor,” *European Journal of Mechanics-B/Fluids*, vol. 26, pp. 155–181, 2007.

- [193] H. Sugimoto, S. Takata et S. Kosuge, “Gas separation effect of the pump driven by the thermal edge flow,” *Rarefied Gas Dynamics*, pp. 1158–1163, 2007.
- [194] B. Elyassi, M. Sahimi et T. T. Tsotsis, “Silicon carbide membranes for gas separation applications,” *Journal of Membrane Science*, vol. 288, pp. 290–297, 2007.
- [195] K. Keizer, R. Uhlhorn, R. Van Vuren et A. Burggraaf, “Gas separation mechanisms in microporous modified γ - Al_2O_3 membranes,” *Journal of Membrane Science*, vol. 39, pp. 285–300, 1988.
- [196] A. A. S. Bhagat, E. T. Peterson et I. Papautsky, “A passive planar micromixer with obstructions for mixing at low Reynolds numbers,” *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 17, 2007.
- [197] S. Bennett, “A lattice Boltzmann model for diffusion of binary gas mixtures,” Thèse de doctorat, University of Cambridge, 2010.
- [198] J. Ren, Q. Zheng et Y. Li, “Curved boundary condition for lattice Boltzmann modeling of binary gaseous micro-scale flows in the slip regime,” *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, vol. 550, 2020.
- [199] Y. Zhang, P. Wang et Z. Guo, “Oscillatory Couette flow of rarefied binary gas mixtures,” *Physics of Fluids*, vol. 33, 2021.
- [200] Q. Zheng et R. Junjie, “Lattice Boltzmann simulation of micro-scale Couette flow of two-component gas mixtures in the slip regime,” dans *International Conference on Computation and Information Sciences (ICCIS)*, 2019.
- [201] S. Meskos, S. Stefanov et D. Valougeorgis, “Gas mixing and final mixture composition control in simple geometry micro-mixers via DSMC analysis,” *Micromachines*, vol. 10, 2019.
- [202] P. J. Kerkhof, M. A. Geboers et K. J. Ptasinski, “On the isothermal binary mass transport in a single pore,” *Chemical Engineering Journal*, vol. 83, pp. 107–121, 2001.
- [203] M. Ho, S. Ammar, S. Leclaire, M. Reggio et J.-Y. Trépanier, “Comparative study of multicomponent lattice Boltzmann models for binary mixture flows,” *International Journal of Modern Physics C*, 2021.
- [204] G. A. Bird, *Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows*. Oxford : Oxford Science Publications, 1994.
- [205] S. Göll et M. Piesche, “Numerical simulation of multi-component diffusion and slip-flow in microporous media,” *Chemie Ingenieur Technik*, vol. 83, pp. 813–821, 2011.
- [206] S. Wang, Z. Pan, J. Zhang, Z. Yang, Y. Wang, Y.-S. Wu, X. Li et A. Lukyanov, “On the Klinkenberg effect of multicomponent gases,” dans *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. OnePetro, 2017.

- [207] J. Zhao, J. Yao, M. Zhang, L. Zhang, Y. Yang, H. Sun, S. An et A. Li, “Study of gas flow characteristics in tight porous media with a microscale lattice Boltzmann model,” *Scientific Reports*, vol. 6, pp. 1–11, 2016.
- [208] M. Knudsen, “Die gesetze der molekularströmung und der inneren reibungsströmung der gase durch röhren,” *Annalen der Physik*, vol. 333, pp. 75–130, 1909.
- [209] F. Sharipov et D. Kalempa, “Velocity slip and temperature jump coefficients for gaseous mixtures. I. viscous slip coefficient,” *Physics of Fluids*, vol. 15, pp. 1800–1806, 2003.
- [210] A. Stepanenko, V. Zaznoba et V. Zhdanov, “Boundary slip phenomena in multicomponent gas mixtures,” *Physics of Fluids*, vol. 31, 2019.
- [211] L. Szalmás, “Viscous velocity, diffusion and thermal slip coefficients for ternary gas mixtures,” *European Journal of Mechanics-B/Fluids*, vol. 53, pp. 264–271, 2015.
- [212] Q. Zou et X. He, “On pressure and velocity boundary conditions for the lattice Boltzmann BGK model,” *Physics of Fluids*, vol. 9, pp. 1591–1598, 1997.
- [213] D. Bond, V. Wheatley et M. Goldsworthy, “Numerical investigation of curved channel Knudsen pump performance,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 76, pp. 1–15, 2014.
- [214] F. Sharipov, “Gaseous mixtures in vacuum systems and microfluidics,” *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 31, 2013.
- [215] I. Graur, P. Perrier, W. Ghazlani et J. G. Méolans, “Measurements of tangential momentum accommodation coefficient for various gases in plane microchannel,” *Physics of Fluids*, vol. 21, 2009.
- [216] L. Pan, G. Liu et K. Lam, “Determination of slip coefficient for rarefied gas flows using direct simulation Monte Carlo,” *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 9, 1999.
- [217] B. Reed et L. Dang, “Experimental evaluation of cold flow micronozzles,” dans *37th Joint Propulsion Conference and Exhibit*, 2001.
- [218] F. Panerai, J. C. Ferguson, J. Lachaud, A. Martin, M. J. Gasch et N. N. Mansour, “Micro-tomography based analysis of thermal conductivity, diffusivity and oxidation behavior of rigid and flexible fibrous insulators,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 108, pp. 801–811, 2017.
- [219] J. C. Ferguson, F. Panerai, J. Lachaud, A. Martin, S. C. Bailey et N. N. Mansour, “Modeling the oxidation of low-density carbon fiber material based on micro-tomography,” *Carbon*, vol. 96, pp. 57–65, 2016.

- [220] T. Zhang, L. Jia et Z. Wang, “Validation of Navier–Stokes equations for slip flow analysis within transition region,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 51, pp. 6323–6327, 2008.
- [221] W. P. Yudistiawan, S. Ansumali et I. V. Karlin, “Hydrodynamics beyond Navier–Stokes : the slip flow model,” *Physical Review E*, vol. 78, 2008.
- [222] C. Cercignani, *Mathematical methods in kinetic theory*. New York : Springer Science & Business Media, 1969, vol. 1.
- [223] J.-M. Tucny, D. Vidal, S. Leclaire et F. Bertrand, “Kinetic slip boundary condition for isothermal rarefied gas flows through static non–planar geometries based on the regularized lattice Boltzmann method,” *Communications in Computational Physics*, vol. 31, pp. 816–868, 2022.
- [224] Z. Yulong, L. Xiangyu, L. Zhang et S. Baochao, “A basic model of unconventional gas microscale flow based on the lattice Boltzmann method,” *Petroleum Exploration and Development*, vol. 48, pp. 179–189, 2021.
- [225] Y. Zhang, R. Qin et D. R. Emerson, “Lattice Boltzmann simulation of rarefied gas flows in microchannels,” *Physical Review E*, vol. 71, 2005.
- [226] T. Zhao, H. Zhao, X. Li, Z. Ning, Q. Wang, W. Zhao et J. Zhang, “Pore scale characteristics of gas flow in shale matrix determined by the regularized lattice Boltzmann method,” *Chemical Engineering Science*, vol. 187, pp. 245–255, 2018.
- [227] R. W. Baker, *Membrane technology and applications*. Chichester : John Wiley & Sons, 2012.
- [228] F. Sun, Y. Yao, G. Li et M. Dong, “Transport behaviors of real gas mixture through nanopores of shale reservoir,” *Journal of Petroleum Science and Engineering*, vol. 177, pp. 1134–1141, 2019.
- [229] H. Paradis et B. Sundén, “Evaluation of lattice Boltzmann method for reaction–diffusion process in a porous SOFC anode microstructure,” dans *International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels*, vol. 44793. American Society of Mechanical Engineers, 2012, pp. 163–171.
- [230] Y. Guo, X. He, W. Huang et M. Wang, “Microstructure effects on effective gas diffusion coefficient of nanoporous materials,” *Transport in Porous Media*, vol. 126, pp. 431–453, 2019.
- [231] W. Zheng et S. H. Kim, “The effects of catalyst layer microstructure and water saturation on the effective diffusivity in PEMFC,” *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 165, 2018.

- [232] Y. Lin, C. Yang, C. Choi, W. Zhang, H. Machida et K. Norinaga, “Lattice Boltzmann simulation of multicomponent reaction–diffusion and coke formation in a catalyst with hierarchical pore structure for dry reforming of methane,” *Chemical Engineering Science*, vol. 229, 2021.
- [233] M. Ho, S. Ammar, S. Leclaire, M. Reggio et J.-Y. Trépanier, “Lattice Boltzmann modeling of miscible multicomponent gas mixtures in the rarefied regime (in review),” *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*, 2022.
- [234] H. Yu, J. Chen, Y. Zhu, F. Wang et H. Wu, “Multiscale transport mechanism of shale gas in micro/nano-pores,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 111, pp. 1172–1180, 2017.
- [235] L. Chen, Q. Kang, R. Pawar, Y.-L. He et W.-Q. Tao, “Pore–scale prediction of transport properties in reconstructed nanostructures of organic matter in shales,” *Fuel*, vol. 158, pp. 650–658, 2015.
- [236] J.-M. Tucny, S. Leclaire, D. Vidal et F. Bertrand, “Investigation on the validity of the extended Navier–Stokes equations to compute rarefied gas flows in a cylinder array using ray–tracing (in review),” *Journal of Computational Physics*, 2022.
- [237] S. Leclaire, A. Parmigiani, O. Malaspinas, B. Chopard et J. Latt, “Generalized three–dimensional lattice Boltzmann color-gradient method for immiscible two–phase pore–scale imbibition and drainage in porous media,” *Physical Review E*, vol. 95, 2017.
- [238] S. Ammar, G. Pernaudat et J.-Y. Trépanier, “A multiphase three–dimensional multi–relaxation time (MRT) lattice Boltzmann model with surface tension adjustment,” *Journal of Computational Physics*, vol. 343, pp. 73–91, 2017.
- [239] H. Yu, L.-S. Luo et S. S. Girimaji, “LES of turbulent square jet flow using an MRT lattice Boltzmann model,” *Computers & Fluids*, vol. 35, pp. 957–965, 2006.
- [240] Z. Guo, B. Shi et C. G. Zheng, “An extended Navier–Stokes formulation for gas flows in the Knudsen layer near a wall,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 80, 2007.
- [241] J. Latt et B. Chopard, “Lattice Boltzmann method with regularized pre–collision distribution functions,” *Mathematics and Computers in Simulation*, vol. 72, pp. 165–168, 2006.
- [242] C. Cercignani et M. Lampis, “Kinetic models for gas–surface interactions,” *Transport Theory and Statistical Physics*, vol. 1, pp. 101–114, 1971.
- [243] R. Barber, Y. Sun, X. Gu et D. Emerson, “Isothermal slip flow over curved surfaces,” *Vacuum*, vol. 76, pp. 73–81, 2004.

- [244] J. Bentz, R. Tompson et S. Loyalka, “Viscosity and velocity slip coefficients for gas mixtures : measurements with a spinning rotor gauge,” *Journal of Vacuum Science & Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 17, pp. 235–241, 1999.
- [245] Y. Wang et S. A. Aryana, “Pore–scale simulation of gas flow in microscopic permeable media with complex geometries,” *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, vol. 81, 2020.
- [246] W. Liu, J. Zhang, Y. Jiang, L. Chen et C.-H. Lee, “DSMC study of hypersonic rarefied flow using the Cercignani–Lampis–Lord model and a molecular–dynamics–based scattering database,” *Physics of Fluids*, vol. 33, 2021.
- [247] C. Bing-Yang, C. Min et G. Zeng-Yuan, “Rarefied gas flow in rough microchannels by molecular dynamics simulation,” *Chinese Physics Letters*, vol. 21, 2004.
- [248] B.-Y. Cao, “Non–Maxwell slippage induced by surface roughness for microscale gas flow : a molecular dynamics simulation,” *Molecular Physics*, vol. 105, pp. 1403–1410, 2007.
- [249] G. Arya, H.-C. Chang et E. J. Maginn, “Molecular simulations of Knudsen wall-slip : effect of wall morphology,” *Molecular Simulation*, vol. 29, pp. 697–709, 2003.
- [250] S. K. Prabha et S. P. Sathian, “Determination of accommodation coefficients of a gas mixture in a nanochannel with molecular dynamics,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 13, pp. 883–890, 2012.
- [251] D. Ameer et G. Galliéro, “Slippage of binary fluid mixtures in a nanopore,” *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 15, pp. 183–189, 2013.
- [252] P. Asinari et T. Ohwada, “Connection between kinetic methods for fluid–dynamic equations and macroscopic finite–difference schemes,” *Computers & Mathematics with Applications*, vol. 58, pp. 841–861, 2009.