Étude préliminaire sur la synthèse des poudres nanométriques : rôle de l'écoulement dans le réacteur

M. AMARA, M. EL GANAOU^a ET D. HOURLIER

SPCTS, UMR 6638, Faculté des Sciences et Techniques, 123 avenue Albert Thomas, 87060 Limoges, France

Reçu le 31 août 2004, accepté le 17 octobre 2005

Résumé – Les recherches autour des céramiques techniques connaissent récemment un regain d'intérêt. Les travaux se concentrent sur l'amélioration des propriétés intrinsèques de ces matériaux en vue de leur utilisation dans différents domaines de l'industrie (mécanique, thermique,...). Les procédés de synthèse de nanopoudre jouent un rôle important dans la production de tels matériaux à grande valeur ajoutée. Nous nous intéressons plus particulièrement à la synthèse des nanopoudres par pyrolyse laser. Dans ce travail, on montre la nécessité d'une prise en compte globale de l'ensemble de l'enceinte et des écoulements pour une meilleure description des processus de synthèse et de collecte de nanopoudres.

Mots clés : Nanopoudres / pyrolyse laser / Mécanique des Fluides Numérique / nucléation et croissance des poudres

Abstract – **A preliminary study on the nanopowders synthesis: the role of the flow inside the reactor.** The research on technical ceramics knows recently an increasing interest. Investigations concern the improvement of intrinsic properties to provide a better use in industrial domains (mechanics, heat transfer...). The process of nanopowder synthesis plays an important role in the generation of high quality products. A reactor of nanopowder synthesis is considered in this work, the investigation of such a reactor is generally focusing on the production area around the interaction of a laser and a gas and some problems of collection are not yet explained. The present work shows that it is necessary to consider a global approach of the whole reactor and fluid flows for a better description of the synthesis and the collection processes.

Key words: Nanopowder / laser pyrolysis / Computational Fluid Dynamic / nucleation and growth

1 Introduction

Nous assistons depuis une dizaine d'années au retour en force des céramiques techniques. La multiplicité des recherches résulte des excellentes propriétés intrinsèques de ces matériaux (Rossignol 1995 [1]) à savoir : (1) résistance à la rupture à haute température, (2) stabilité thermique, ainsi qu'une bonne inertie chimique, (3) une faible masse volumique plaçant pour le domaine où la limitation en poids est impérative (aéronautique et industrie spatiale par exemple).

Parmi les céramiques les plus prometteuses se trouve le nitrure de silicium (Si_3N_4). En effet, sa liaison covalente Si-N lui confère une bonne stabilité chimique, une résistance mécanique exceptionnelle, une bonne tenue à la corrosion et aux chocs thermiques. Ces propriétés font de ce matériau un candidat potentiel pour les applications à haute température, tels que les moteurs

à combustion (Brook 1999 [2]), soupapes d'admission et d'échappement, bagues de frottement et d'étanchéité, roulements à billes, rotors de turbocompresseur. L'utilisation d'un tel matériau dans le cas d'engins mobiles, donne lieu à un gain notable de poids et par suite à une diminution de la consommation de carburant.

Le désavantage majeur réside dans le fait que les céramiques ont une faible ténacité (i.e. fragilité et fiabilité au service). Aussi la difficulté et le coût de fabrication de pièces de cotes bien précises freinent le développement industriel de ces matériaux. La recherche de solutions à ces problèmes pour l'industrie se situe au centre des préoccupations de notre laboratoire.

De nouveaux procédés d'élaboration sont en cours d'étude, pour faciliter le développement industriel des céramiques. Nous nous intéressons plus particulièrement au formage à chaud, qui permet d'obtenir des pièces aux cotes bien finies. Néanmoins, cette technique nécessite une forte ductilité du matériau à haute température,

^a Auteur correspondant : ganaoui@unilim.fr

cette propriété n'étant possible que si la microstructure de la céramique est formée par des grains de taille nanométrique. Les matériaux ainsi formés sont dits nanostructurés.

L'élaboration de cette nouvelle classe de matériau, nécessite l'utilisation de poudres de caractéristiques bien définies, à savoir : une faible taille (inférieure à 100 nm), une distribution étroite en taille et une excellente pureté.

Il existe plusieurs voies de synthèse des poudres nanométriques et la plus prometteuse reste celle par voie gazeuse (Ring 1996 [3]; Pratsinis & Srinivas 1996 [4]; Swihart 2003 [5]). Plusieurs méthodes utilisant cette voie de synthèse diffèrent par la source d'énergie employée pour dissocier les gaz réactifs : dans le cas des fours, ce sont la conduction et la convection qui transportent la chaleur. Pour les plasmas, c'est l'énergie cinétique transportée par les électrons et les ions. Enfin, la méthode exposée dans cet article et développée au sein de notre équipe est appelée pyrolyse laser. Elle consiste en la résonance entre la longueur d'onde de l'émission d'un laser et la longueur d'onde d'absorption d'une des molécules formant le gaz réactif. Il est important et inévitable (Swihart 2003 [5]), pour contrôler les caractéristiques des poudres, d'entreprendre une étude globale couplant la cinétique chimique, la croissance des poudres, ainsi que les transferts de chaleur et de masse au sein des phases fluides. En effet, la nucléation et la croissance des particules dépendent directement des champs de température, de vitesse et de concentration des espèces. Ces paramètres dépendent fortement des processus de transfert par conduction, convection en présence de changements de phases, et du refroidissement par rayonnement.

Le présent travail se situe en amont du procédé de formage à chaud et de la synthèse des poudres. Nous avons développé un modèle tridimensionnel de notre réacteur et sa résolution numérique est obtenue grâce à l'emploi d'un code industriel de mécanique des fluides (CFX 5). Ce modèle couple deux aspects importants de la synthèse : la dynamique des gaz et les fluides réactifs. Le but de cette étude est de permettre une meilleure compréhension de la synthèse des nanopoudres, de contribuer à son contrôle et à une possible optimisation du procédé.

2 Pyrolyse laser : quelques éléments

La méthode de synthèse des nanopoudres céramiques par pyrolyse laser a été développée dans les années 80 au MIT (Cannon et al. 1982 [6]). Elle repose sur l'interaction à flux croisé entre un précurseur liquide ou gazeux et un faisceau laser CO_2 dans le domaine infrarouge ($\lambda = 10,6 \mu\text{m}$). Une représentation schématique du dispositif expérimental équivalent à celui développé au sein de notre laboratoire est donnée par la figure 1. Il comprend un laser CO_2 délivrant une puissance nominale de 1,5 kW et dont la longueur d'onde est fixée à $10,6 \mu\text{m}$, une enceinte de réaction en acier inoxydable où deux fenêtres en KCl laissent passer le faisceau ; un flux d'argon annulaire appelé gaz vecteur, confine la réaction pour

(a)

(b)

(c)

Fig. 1. (a) Réacteur de synthèse des nanopoudres ; (b) schéma simplifié du montage expérimental ; (c) maillage du domaine de calcul.

éviter toute contamination avec les parois du réacteur. Les précurseurs sont introduits perpendiculairement au faisceau laser ; une fois la réaction finie, les poudres sont acheminées dans un collecteur en verre, muni d'un filtre formé par un tube métallique poreux.

Une condition nécessaire est qu'il y ait résonance entre le spectre d'émission du rayonnement laser et le spectre d'absorption d'au moins un des réactifs. Cette interaction a pour conséquence une augmentation rapide de la température (10^6 K.s^{-1}). En effet, après absorption des niveaux vibrationnels des molécules, l'énergie est redistribuée au système par collision et le gaz atteint rapidement l'équilibre thermique. Dans la zone réactionnelle se forme une flamme, il est important de noter qu'elle n'est pas une conséquence d'une réaction

de combustion (Akmandor 1985 [7]), mais qu'elle est due au rayonnement thermique des poudres formées. Les particules issues de cette méthode se caractérisent par une grande pureté, un contrôle de la stoechiométrie et une distribution en taille étroite. En effet, du fait que la réaction est très localisée, elle ne se trouve pas en contact avec les parois du réacteur. De plus, l'effet de trempe subi par les particules, limite leur taille lors du processus de croissance, donnant ainsi des poudres de quelques dizaines de nanomètres.

Les modèles de formation de poudres (Haggerty & Bowen 1985 [8]) montrent que la synthèse du nitrure de silicium et du carbure de silicium, passe par deux étapes. La première étant la formation des particules de silicium, ensuite vient l'étape de nitruration ou de carburation. Notre étude se focalise ici sur la synthèse du silicium.

3 Modèle

3.1 Mécanismes réactionnels

Pour la synthèse du silicium, nous utilisons le silane comme précurseur car ce gaz possède une bande d'absorption adéquate à la longueur d'onde du laser CO₂. L'énergie apportée au système n'est pas suffisante pour briser les liaisons moléculaires via l'excitation des états électroniques. En revanche, les états vibrationnels sont très largement excités. Ainsi une condition nécessaire pour que le taux de réaction soit significatif, est que l'énergie d'excitation soit de l'ordre de grandeur de l'énergie d'activation relative à la décomposition du silane qui est environ de $E_a \approx 100\text{--}380 \text{ kJ.mol}^{-1}$ (soit $1\text{--}4 \text{ eV.molécule}^{-1}$). Les photons utilisés ($\lambda = 1,6 \text{ }\mu\text{m}$), transportent une énergie de $1,90 \times 10^{-20} \text{ J}$ ($0,12 \text{ eV}$). Dans le cas de la décomposition du silane en SiH₃ et H ($E_a \approx 318 \text{ kJ.mol}^{-1}$ soit $3,3 \text{ eV.molécule}^{-1}$), il faut approximativement 30 photons. Ceci signifie que plusieurs mécanismes (collisions, radiations) doivent entrer en jeu pour arriver à cette dissociation. Du point de vue macroscopique, l'absorption du rayonnement laser se produit selon la loi de Beer-Lambert (Marra 1983 [9]) :

$$I = I_0 \cdot [1 - \exp(-\alpha_{\text{abs}} P \Delta L)] \quad (1)$$

où I_0 est la densité de puissance de la source laser, α_{abs} est le coefficient d'absorption du gaz au rayonnement laser, P est la pression totale de l'enceinte et ΔL est l'épaisseur optique d'absorption.

La réaction de décomposition thermique du silane se produit vers 700 K :

Cette décomposition résulte de 120 étapes (Coltrin et al. 1984 [10]) et donne naissance à de nombreux radicaux chimiques tels que SiH₂ ou SiH₃. À 900 K, l'espèce majoritaire est le silylène qui gère la décomposition du silane suivant la réaction.

La vitesse de la réaction (3) est donnée par la relation (Coltrin et al. 1984 [10]) :

$$\frac{d[\text{SiH}_4]}{dt} = [\text{SiH}_4] \cdot 5 \times 10^{12} \exp\left(\frac{-228 \text{ kJ.mol}^{-1}}{RT}\right) \quad (4)$$

Pour l'écoulement, on peut définir trois types de temps caractéristiques : convection, conduction et réaction chimique. $t_{\text{conv}} = L/\bar{U}$: L étant une distance caractéristique (ici le diamètre du laser) et $\bar{U}$ une vitesse moyenne ici égale à la vitesse du gaz à la sortie de la buse ($\sim 1 \text{ m.s}^{-1}$) ; $t_{\text{conv}} \approx 10^{-3} \text{ s}$. $t_{\text{cond}} = L^2/4\alpha$: α est la diffusivité thermique ($\sim 15 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$) ; $t_{\text{cond}} \approx 10^{-3} \text{ s}$ et enfin $t_{\text{reac}} = 1/k$: k est défini par la loi d'Arrhenius $t_{\text{reac}} \approx 10^{-6} \text{ s}$.

La comparaison des différents temps caractéristiques indique que les processus chimiques sont infiniment plus rapides que les processus dynamiques. Par conséquent, nous pouvons considérer que la réaction prédominante dans le cycle de décomposition du silane est celle qui donne lieu à la formation du silylène.

3.2 Approximations numériques et validation du code

3.2.1 Hypothèses

Hormis les travaux de Akmandor et al. (1985 [7], 1988 [11]) dans les années 80, il n'y a pas eu à notre connaissance de résultats de modélisation de synthèse des poudres par pyrolyse laser. Le modèle développé par Akmandor est restreint à une géométrie bidimensionnelle, alors que le problème est fondamentalement tridimensionnel. En effet, le jet des gaz réactifs est bien axisymétrique, mais l'interaction avec le laser détruit cette symétrie. Il est important de faire une étude détaillée de l'écoulement des gaz à l'intérieur du réacteur, ainsi que sur son interaction avec le laser, pour prédire les caractéristiques des poudres. Cette étude permettra d'avoir une indication sur les champs de température, de vitesse et les fractions massiques des produits de réaction. En effet, ces données sont primordiales pour les modèles de formation des poudres. C'est dans ce sens que le modèle couple à la fois la cinétique chimique et la mécanique des fluides. Un code industriel de mécanique des fluides numérique, CFX-5 est utilisé comme base pour le développement spécifique de notre problème. Ce code de calcul basé sur la méthode des volumes finis, permet de modéliser des écoulements très variés dans des configurations complexes, en particulier les écoulements réactifs.

Le modèle 3D que nous avons développé, permet de résoudre les équations de conservation de la masse, de l'énergie, de la quantité de mouvement et des espèces chimiques. Les équations sont écrites sous leur forme générale (Patankar 1980 [12]) :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\phi) + \nabla \cdot (\rho V\phi) = \nabla \cdot (\Gamma \nabla \phi) + S \quad (5)$$

où S représente le terme source de la variable ϕ (Γ le coefficient de diffusion correspondant). Les débits des gaz (réactifs et de contrôle) ont été considérés comme conditions aux limites. La pression de l'enceinte est maintenue constante pendant la synthèse.

Fig. 2. (a) Température le long de l'axe du jet ($z = 0$ correspond à la buse des gaz réactifs). Les deux traits discontinus, indiquent la zone laser; (b) température calculée pour plusieurs nombres de nœuds du maillage.

3.2.2 Qualification

Dans ce premier travail, nous négligeons l'effet des poudres sur la dynamique de l'écoulement ainsi que les pertes d'énergie par rayonnement. En effet, pour une fraction volumique des poudres par rapport à la phase gaz inférieure à 10^{-6} , il n'y a pas d'effet des particules solides sur l'écoulement (Ranade & Ranade 2001 [13]).

Pour valider notre maillage nous avons comparé la température pour différents maillages (Fig. 2b). À un niveau suffisant de discrétisation, les maillages sont suffisants pour décrire le problème (Tab. 1, Fig. 2b). Ainsi le maillage M2 (192 257 éléments) sera considéré pour les simulations, il donne un bon rapport entre le temps CPU et la précision du calcul.

Dans un second temps, les présents résultats ont été comparés avec ceux de Akmandor limités à une configuration axisymétrique ainsi qu'aux résultats expérimentaux donnés par Marra (1983 [9]) (Fig. 2). L'écart de température entre notre modèle et l'expérience au début de la zone réactive peut être dû en partie à la précision des mesures de la température par les méthodes pyrométriques. En effet, le fait que la zone de flamme

Tableau 1. différents types de maillages utilisés.

	Nombre de nœuds	Nombre d'éléments	$T_{\max}$ (K)	$V_{\max}$ (m.s^{-1})
M1	91 259	403 824	1338	2,07
M2	192 257	920 784	1368	2,11
M3	359 873	1 792 600	1362	2,11

observée corresponde à la zone de formation des poudres, implique qu'il peut y avoir un écart de température entre ces deux zones. Les résultats tels que la température de fin de réaction ainsi que la vitesse (Amara et al. 2003 [14]), sont en bon accord avec ceux de Akmandor. Une autre source d'écart peut provenir du rayonnement thermique des poudres qui n'est pas pris en compte dans cette étude préliminaire.

Le modèle étant considéré validé, nous allons étudier la configuration géométrique complète du réacteur proche de notre dispositif expérimental. Nous avons choisi un maillage non structuré (Fig. 1c), s'adaptant au mieux aux détails du réacteur. Pour le régime de l'écoulement et dans les conditions actuelles de travail ($Re < 1500$), l'écoulement du jet est laminaire. En effet, dans ce type d'écoulement, la turbulence n'est pleinement développée qu'à partir d'un nombre de Reynolds égal à 10^5 (Mhiri et al. 1998 [15]), ce qui n'est pas le cas pour un réacteur industriel.

4 Résultats et discussions

Dans l'étude de la synthèse des poudres céramiques pour des applications industrielles, il est nécessaire de comprendre la relation entre paramètres de synthèse (pression, débits, intensité laser) et les caractéristiques des poudres obtenues. Dans le cas de la synthèse par pyrolyse laser, hormis la température qui est estimée par des méthodes de type pyrométrie (peu précise), il est difficile d'avoir les valeurs des champs de vitesse et de température. Or, sans ces valeurs on ne peut pas prévoir la taille et les caractéristiques des poudres obtenues. Par exemple, pour la morphologie des poudres, il est nécessaire d'avoir la valeur de la température atteinte par la réaction. Si elle est au-dessus de la température de fusion du silicium, et si le refroidissement est rapide, nous obtiendrons des poudres de forme sphérique. Dans le cas où la température est proche du point de fusion les poudres auront une forme d'agrégat fractal. De plus, la forme du champ de température (voir plus bas l'effet du gaz vecteur) donnera des indications sur l'homogénéité et la distribution en taille des poudres.

Notre étude reprend classiquement l'effet des paramètres de contrôle du processus mais s'étend, contrairement aux approches classiques, à la caractérisation de l'écoulement au sein du réacteur, pouvant ainsi expliquer certains problèmes de collecte rencontrés dans le procédé expérimental.

Fig. 3. Température le long de l'axe du jet ainsi que la flamme pour différentes pressions respectivement. $P = 0,2$ et $0,7$ atm.

4.1 Effets des paramètres

Pour le champ de température, il est constaté que le débit du gaz vecteur a peu d'effet sur le refroidissement de la flamme à haute pression (Fig. 3). Pour approfondir l'étude de l'effet du gaz vecteur, nous avons comparé deux types de gaz : argon et hélium. La figure 4 indique que l'hélium a pour effet d'élargir et de refroidir la zone chaude. Ceci est dû à la chaleur massique de ce dernier comparée à celle de l'argon ($Cp_{He}/Cp_{Ar} \sim 10$). Il y a lieu de noter que la température maximale atteinte par la flamme est inversement proportionnelle à la vitesse et à la chaleur massique du gaz vecteur utilisé. La figure 4 dans le cas de l'utilisation de l'hélium montre que le silane se décompose partiellement avant d'interagir avec le laser, ceci suggère un effet de transfert thermique par conduction dans la zone pré-laser, tout en réduisant l'efficacité de réaction.

Enfin, l'ensemble des résultats indique bien que la pression reste le paramètre pertinent responsable de l'augmentation de la température; ceci est dû à la relation indirecte entre ce paramètre et le temps de séjour des réactifs à l'intérieur du faisceau laser. En effet, à débit

Fig. 4. Température le long de l'axe du jet pour deux types de gaz vecteur. Ligne continue : hélium ; ligne discontinue : argon.

Fig. 5. Température le long de l'axe du jet. Ligne continue : $P = 0,7$ atm ; ligne discontinue : $P = 0,2$ atm.

constant, la vitesse est inversement proportionnelle à la pression (Fig. 5).

4.2 Prise en compte de l'écoulement

Pour étudier l'effet du champ de gravité sur le réacteur, et dans le but de stabiliser la collecte des poudres, nous avons étudié deux configurations expérimentales possibles du collecteur, l'une où la collecte s'effectue dans le sens opposé à la gravité, et l'autre dans le même sens. La figure 6 montre que la collecte dans le sens opposé à la gravité est plus stable. En effet, le fort gradient de température dans la zone réactionnelle ($500 \text{ K} \cdot \text{mm}^{-1}$) crée des forces de flottaison très importantes, ces dernières s'opposant au mouvement, ce qui favorise les instabilités. Dans la suite des simulations, nous avons opté pour la configuration la plus stable.

Après cette étude sur le choix de la configuration, nous avons étudié la structure de l'écoulement en fonction de la pression et des débits des gaz. La figure 7 montre les lignes de courants pour différentes valeurs de la pression. Nous remarquons une configuration plus stable (faible recirculation) à haute pression qu'à basse pression. Ces zones

Fig. 6. Deux configurations possibles du réacteur. La collecte par le bas (à droite) perturbe le fluide, et de ce fait, la collecte des poudres.

de recirculation peuvent être néfastes pour la collecte des poudres ainsi que la stabilité de la flamme. En effet, les tourbillons peuvent induire des instabilités de flamme sous forme d'oscillations (Ellzey & Oran 1990 [16]). La variation des conditions locales de synthèse (température) induit une inhomogénéité des poudres formées.

Nous ne disposons d'aucune indication expérimentale sur la transition entre le régime laminaire et le régime turbulent du jet. Toutefois, ce type d'écoulement est très instable même pour des faibles nombres de Reynolds ($Re = UD/\nu$, U étant la vitesse, D le diamètre de la buse de sortie et ν la viscosité du gaz réactif). Dans le cas des simulations développées, le calcul du nombre de Reynolds à la sortie de la buse des gaz réactifs varie entre 600 et 1300. Pratsinis & Srinivas (1996 [4]) indiquent qu'une condition importante dans la synthèse des poudres, est que le réacteur soit sous régime turbulent. La turbulence a pour effet de réduire la distribution en taille des poudres. Ceci indique que les processus de formation des poudres présentent des aspects complexes et que la méthode classique réduite à la cinétique chimique est insuffisante pour décrire globalement le fonctionnement du réacteur. Dans le cas de la synthèse du carbure de silicium, les résultats de Sawano et al. (1987 [17]) montrent que la formation du carbure de silicium passe par deux étapes. La première comporte la formation de particules de silicium, suivie de leur carburation. Ce processus de carburation est contrôlé, non pas par les réactions chimiques, mais par les processus de diffusion entre le silicium et le carbone. Il est important de noter que l'étude de la formation du silicium est importante, avant de faire une étude sur la formation d'autres types de poudres, car il est à la base de la formation de tous les systèmes Si/C/N. D'un autre côté, travailler en turbulence implique de grands nombres de Reynolds, ceci a pour effet d'augmenter les instabilités liées aux jets (Bailly 2003 [18]). Une étude plus détaillée doit être réalisée pour comprendre les phénomènes liés au développement de la turbulence du cas présent.

Fig. 7. Lignes de courant pour différentes valeurs de la pression dans les mêmes conditions.

5 Conclusion

L'apport de la simulation numérique dans le présent travail montre qu'il est indispensable de traiter ce problème de synthèse de poudre dans sa globalité en incluant une dynamique tridimensionnelle des gaz couplée à un modèle de réaction chimique. Les résultats indiquent l'effet prédominant de la pression sur le transfert thermique. On s'attend à ce que les poudres obtenues à haute pression soient plus grandes en taille qu'à basse pression ; ceci est dû à l'augmentation du temps de séjour.

L'ensemble des résultats indique que la température maximale atteinte par la réaction ne dépasse pas la température de fusion du silicium (1683 K), ce qui implique des processus de formation des poudres de type collisionnel et non de type coalescence de gouttelettes de silicium.

Sous certaines conditions, il peut y avoir création d'instabilités sous forme d'oscillations de flamme (Akmandor 1985 [7]). Cet effet se répercute directement sur les caractéristiques des poudres collectées. Il est évident que les caractéristiques du réacteur telles que la forme de la buse d'injection des gaz, le débit des gaz, la pression, ainsi que le volume du collecteur peuvent intervenir dans ce type d'instabilité. Des études des caractéristiques des poudres pour optimiser le réacteur et stabiliser la flamme à travers une expérimentation numérique sont en cours.

Enfin, il est important de coupler des modèles locaux de croissance des poudres à des modèles globaux d'écoulement pour étudier à la fois la croissance des poudres et leur advection dans le collecteur.

Références

- [1] F. Rossignol, Nitrure de silicium monolithique et composites à fibres courtes $\text{Si}_3\text{N}_4\text{m}/\text{SiCf}$: relations microstructures-renforcement-déformation plastique à haute température, Thèse Université de Limoges, 1995
- [2] R. Brook, J. Superhard ceramics, *Nature* 400 (1999) 312–315
- [3] T.A. Ring, Fundamental of ceramic powder processing and synthesis, Salt Lake City, Utah, University of Utah, 1996
- [4] S.E. Pratsinis, V. Srinivas, Particle formation in gases : a review, *Powder Technology* 88 (1996) 267–273
- [5] M.T. Swihart, Vapor-phase synthesis of nanoparticles. Current Opinion in Colloid and Interface Science 8 (2003) 127–133
- [6] W.R. Cannon, S.C. Danforth, J.H. Flint, J.S. Haggerty, R.A. Marra, Sinterible ceramic powders from laser-driven reactions : I, process description and modeling, *J. Am. Ceramics Soc.* 65 (1982) 324
- [7] I.S. Akmandor, Theoretical and computational models of reacting silane gas flows: laser driven pyrolysis of subsonic and supersonic jets, Department of Materials Science and Engineering, Cambridge, MIT, 1985
- [8] J.S. Haggerty, H.K. Bowen, Processing of laser formed SiC powder, Cambridge, MIT, 1985
- [9] R.A. Marra, Homogenous nucleation and growth of silicon powder from laser heated gas phase reactants. Department of Materials Science and Engineering, Cambridge, MIT, 1983
- [10] M.E. Coltrin, R.J. Miller, J.A. Miller, A mathematical model of the coupled fluid mechanics and chemical kinetics in a chemical vapor deposition reactor, *J. Electrochem Soc.* 131 (1984) 425–34. CFX 5
<http://www-waterloo.ansys.com/>
- [11] I.S. Akmandor, J. Szekely J.S. Haggerty, Heat and momentum transfer in laser induced decomposition of silane jets : theory and experiments, *Int. J. Heat Mass Transfer* 31 (1988) 2239–2249.
- [12] S.V. Patankar, Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, 1980
- [13] V.V. Ranade, V. Ranade, Computational flow modeling for chemical reactor engineering, Book News, Portland, OR, 2001
- [14] M. Amara, M. El Ganaoui, D. Hourlier, P. Goursat, Modélisation numérique de la synthèse de poudres nanométriques Si/C/N par pyrolyse laser, *J. Physical & Chemical News*, 2005
- [15] H. Mhiri, S. El Golli, G. Le Palec, P. Bournot, Influence des conditions d'émission sur un écoulement de type jet plan laminaire isotherme ou chauffé, *Rev. Gén. Therm.* 37 (1998) 898–910
- [16] J.L. Ellzey, E.S. Oran, Effects of Heat release and gravity on an unsteady diffusion flame, Twenty-Third International Symposium on Combustion, the Combustion Institute (1990) 1635–1640
- [17] K. Sawano, J.S. Haggerty, H.K. Bowen, Formation of SiC powder from laser heated vapor phase reaction, *Yogyo-Kyokai-Shi* 95 (1987) 64–69
- [18] C. Bailly. G. Comte-Bellot. Turbulence, CNRS éd., 2003