

Sensibilité d'un front propagatif aux transitions hydrodynamiques

Simona Bodea¹ & Alain Pocheau¹

IRPHE, Aix-Marseille Université
49 rue Frédéric Joliot Curie, B.P. 146, 13384 Marseille Cedex 13
bodea@irphe.univ-mrs.fr

Résumé. Cette étude porte sur la propagation d'un front de réaction-diffusion dans un écoulement stationnaire composé d'une rangée de vortex contrarotatifs. Le front est obtenu par réaction auto catalytique en solution aqueuse et l'écoulement est généré par électroconvection dans un canal allongé de faible profondeur. En augmentant l'amplitude des écoulements, on passe d'écoulements cellulaires plans (de type Hele-Shaw) à des écoulements cellulaires tridimensionnel (3D) incluant des écoulements secondaires le long de l'axe des vortex. Lors de cette transition, nous observons une forte augmentation de la vitesse de propagation du front en étroite corrélation avec un changement de structure de la trajectoire du front. Ceci montre une forte sensibilité des fronts de réaction-diffusion à la structure des écoulements dans lesquels ils se propagent, propriété qui pourrait s'avérer intéressante en microfluidique, à titre de diagnostique ou d'utilisation.

Abstract. We study the propagation of a reaction-diffusion front in a chain of a steady counter-rotating vortices. The front is obtained by means of an autocatalytic chemical reaction in aqueous solution and the flow is induced by electroconvection in a long channel with a small depth. Increasing the flow amplitude, we go from planar cellular flows (of Hele-Shaw type) to three-dimensional flows involving secondary flows along the vortex axes. During this transition, we observe a large raise of the front propagation velocity, together with a combined change of structure of the front trajectory. Interestingly, this points out a large sensitivity of reaction-diffusion fronts to the structure of the flows in which they propagate. This kind of property could appear potentially useful in microfluidic for diagnoses or applications.

1 Introduction

Le phénomène de propagation de fronts de réaction-diffusion se rencontre dans divers systèmes physiques, chimiques ou biologiques où il est la source de nombreuses applications. Citons comme exemples : la progression des régions de corrosion, la propagation des feux de forêt, la prolifération des colonies de bactéries ou encore la propagation des infections [1]. Cependant, dans des nombreux milieux, le front peut également être soumis à un transport advectif, souvent très efficace devant le transport par réaction-diffusion. Son effet net sur la propagation du front s'avère souvent délicat à établir car il dépend notamment de la structure interne de l'écoulement. Jusqu'à présent, des nombreuses études ont concerné la propagation d'un front de réaction-diffusion dans un écoulement laminaire ou turbulent [2]. En revanche, peu d'études ont été dédiées à la propagation d'un front de réaction-diffusion en présence d'écoulements à lignes de courant fermées [3,4,5].

Nous considérons ici la propagation d'un front de réaction-diffusion dans un écoulement cellulaire stationnaire en géométrie confinée. Cet écoulement est composé d'une rangée de vortex contrarotatifs, à l'intérieur desquels les lignes de courant sont fermées (Fig. 1a). L'advection y est donc efficace, mais restreinte à chaque vortex. Entre, i.e. au voisinage des séparatrices de vortex, le front ne bénéficie plus d'apport advectif pour se propager de vortex en vortex dans la rangée. Il en résulte donc une alternance spatiale de zones de forte ou faible advection effective. Des études précédentes ont montré que la vitesse de propagation du front de réaction était néanmoins augmentée sensiblement, de manière non-linéaire, par suite d'une compétition subtile entre les diverses échelles de temps d'advection, de réaction et de diffusion [5]. En particulier, parmi les trajectoires possibles, le front de réaction-diffusion apparaît suivre celle qui optimise son temps de parcours dans l'écoulement imposé, couches limites comprises. La sensibilité du

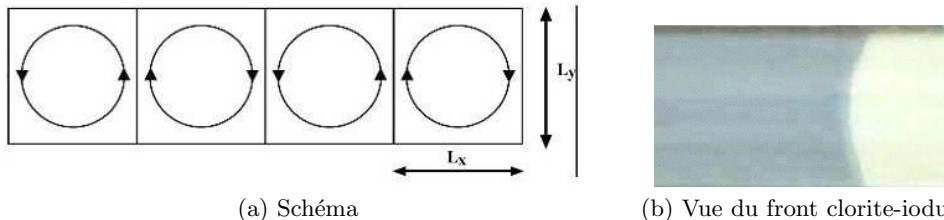


Fig. 1. (a) Schéma de l'écoulement cellulaire. $L_x = L_y = 10$ mm. En régime de Hele-Shaw, l'écoulement est plan. Au delà, des écoulements secondaires apparaissent dans la direction z de l'axe des vortex. (b) Vue du dessus du front chlorite-iodure en absence d'écoulements. Le front se propage de droite à gauche, i.e. de la zone claire (réaction effectuée) à la zone bleu-sombre (réaction non-initiée).

temps de propagation à ces dernières témoigne notamment de la sensibilité du front à la structure de cet écoulement.

L'étude présentée ici poursuit l'étude de cette sensibilité en considérant l'effet d'une transition hydrodynamique sur la propagation du front. Celle-ci est induite par augmentation de l'intensité des écoulements. Elle correspond au passage entre un régime d'écoulement cellulaire plan (de type Hele-Shaw) à un régime d'écoulement cellulaire tridimensionnel (3D) présentant des écoulements secondaires le long de l'axe des vortex. Nous observons alors une forte augmentation de la vitesse de propagation du front, en étroite corrélation avec un changement de structure de sa trajectoire dans le milieu. Au-delà de l'augmentation de l'efficacité de transport propagatif, le front de réaction-diffusion se montre ainsi un révélateur sensible des structures fines de l'écoulement. Cette propriété pourrait s'avérer en pratique intéressante, par exemple en microfluidique à des fins de diagnostique ou d'application en milieu réactif.

2 Expérience

Nos expériences ont été réalisées dans un canal rectangulaire de dimensions suivantes : longueur 400 mm, largeur 10 mm et épaisseur 4 mm. L'écoulement cellulaire y est obtenu par électroconvection grâce à une rangée d'aimants de dimensions 10mm x 10mm placés sous le canal. Leur champ magnétique est vertical mais de sens opposé d'un aimant à l'autre. Une différence de potentiel appliquée entre les extrémités du canal génère un courant électrique, donc des forces de Laplace. Celles-ci donnent alors naissance à une rangée de vortex contrarotatifs sur toute la longueur du canal (Fig. 1a). Les courants appliqués sont de l'ordre du mA et les vitesses d'écoulement obtenues varient entre 10 et 70 mm/min.

Pour des vitesses d'écoulement modérées, l'écoulement reste plan et les couches limites aux parois horizontales s'étendent à toute l'épaisseur du fluide. On est alors dans le régime de Hele-Shaw pour lequel l'écoulement présente un profil de type Poiseuille, avec une vitesse maximale au milieu du canal. Lorsque les vitesses d'écoulement deviennent suffisamment importantes, les couches limites aux parois horizontales se séparent et des écoulements secondaires dirigés selon l'axe des vortex peuvent apparaître. On sort alors du régime de Hele-Shaw avec des écoulements devenus tridimensionnels. Les expériences effectuées ont eu pour objectif de couvrir les deux régimes afin de caractériser l'influence sur la propagation du front de cette transition hydrodynamique 2D/3D.

Le front de réaction-diffusion est obtenu par réaction auto catalytique chlorite-iodure [6]. La concentration des ions chlorite et iodure est fixée à $3,75 \cdot 10^{-4}$ et $3 \cdot 10^{-4}$ mole.l⁻¹ respectivement et le Ph de la solution est stabilisé à 5 grâce à l'ajout d'une solution tampon. Afin de pouvoir visualiser le front, nous rajoutons également de l'amidon. Celui-ci, en présence des ions I_2 et I^- , forme un complexe colorant la solution en bleu. Lorsque la réaction a lieu, la concentration en I_2 et I^- chute brutalement, faisant ainsi disparaître la coloration. Le front de réaction apparaît alors comme la frontière entre une zone sombre (réaction non encore effective) et une zone claire (réaction effectuée) (Fig. 1b).

En absence d'écoulement, le front avance à sa vitesse propre V_0 . Celle-ci dépend a priori de la température qui sera maintenue ici à $T = 20^\circ\text{C}$. La vitesse V_0 est alors de l'ordre de 1mm/min. Elle

est cependant modifiée par application d'un courant électrique puisque celui-ci modifie le transport des ions impliqués dans la réaction. Afin de prendre en compte cet effet, nous avons effectué un étalonnage de la vitesse V_0 en fonction de l'intensité du courant I . Cette variation a été prise en compte de manière systématique lors des analyses quantitatives.

La vitesse caractéristique U de l'écoulement est mesurée en utilisant le front comme traceur. A l'intérieur d'une cellule, il se propage le long d'une ligne de courant qui, entre les séparatrices de chaque vortex, présente une partie quasi-droite. En mesurant la vitesse de propagation du front à cet endroit, on peut alors remonter à la vitesse de l'écoulement (de fait, celle de la ligne de courant la plus rapide). Par ailleurs, tant que les vitesses d'écoulement restent suffisamment modérées pour que le régime Hele-Shaw soit valide, le terme non-linéaire d'advection reste négligeable devant le terme de diffusion visqueuse. Le champ de vitesse évolue alors linéairement avec les forces de Laplace, donc avec le courant I . En particulier, ses lignes de courant restent inchangées et sa vitesse caractéristique U doit suivre I linéairement [5]. Cette dépendance linéaire est bien vérifiée en figure 3a pour des valeurs modérées de I . Pour des valeurs plus élevées de I , on atteint la transition entre écoulement 2D et 3D. Le front modifie alors ses trajectoires de sorte que la vitesse de l'écoulement ne peut plus être mesurée de la même façon. La composante 3D de l'écoulement étant cependant faible, une extrapolation de la tendance linéaire du régime 2D reste valide.

La vitesse effective du front de réaction, V_f , correspond à sa vitesse moyenne d'avancement dans le canal. La propagation étant périodique dans cette chaîne de vortex, elle correspond également à sa vitesse moyenne d'avancement sur une période, i.e. sur deux vortex. Pour augmenter la précision, elle a cependant été mesurée sur plusieurs périodes à partir des enregistrements vidéo de la progression du front. La résolution des images est de 1024x768 pixels et la période d'acquisition est une ou plusieurs secondes suivant la vitesse effective du front. En pratique, la résolution spatiale est de l'ordre 0.1mm et la précision en vitesse de 0.1mm.mn⁻¹.

A chaque vitesse d'écoulement U , nous avons ainsi déterminé la vitesse effective du front V_f , sa vitesse propre V_0 et son type de trajectoire. Cela nous a conduit à considérer l'évolution relative de vitesse du front V_f/V_0 en fonction de la vitesse relative d'écoulement U/V_0 , et en rapport avec les modifications de trajectoire.

3 Résultats et Discussions

La figure 2 présente deux séquences typiques de propagation du front, l'une à amplitude d'écoulement modérée, l'autre à amplitude élevée.

Dans la première (Fig. 2a), l'écoulement est plan, en régime de Hele-Shaw. Le front est alors advecté rapidement le long d'une ligne de courant à l'intérieur des cellules mais avance seulement à sa vitesse propre V_0 pour passer d'une ligne de courant à l'autre ou d'une cellule à l'autre [5]. Sa vitesse effective V_f dans la chaîne de vortex résulte ainsi de la compétition entre une phase d'advection rapide sur une ligne de courant et une phase de propagation lente au travers de la séparatrice des vortex. En particulier, le poids relatif de chacune dépend sensiblement de la trajectoire, i.e. de la ligne de courant suivie lors de l'advection. A l'arrière du point le plus avancé du front, on note des vortex contaminés qui finissent de réagir par avancée radiale à vitesse V_0 d'une ligne de front circulaire. En particulier, sur l'ensemble de la chaîne de vortex, le front reste connexe, comme attendu dans le cas d'un écoulement plan.

En revanche, dans la seconde séquence (Fig. 2b), le front réagit d'abord dans le centre d'un vortex avant de le contaminer aussi par la périphérie. Il apparaît donc non connexe sur ces vues de dessus. Ce type de propagation va de pair avec un écoulement devenu 3D suite à la présence d'écoulements secondaires dirigés selon l'axe des vortex (i.e. normaux au plan des images). Ceux-ci conduisent à un écoulement global en spirales, responsable de la contamination du centre avant la périphérie. Pour autant, leur amplitude dans le voisinage de la transition hydrodynamique est faible. Ceci illustre la grande sensibilité du front aux écoulements et à leurs transitions.

Les différences de type de trajectoires et de mode de contamination se retrouvent dans l'évolution de la vitesse effective V_f du front avec l'amplitude U de l'écoulement. On note ainsi, en figure 3b une augmentation régulière de V_f/V_0 avec U/V_0 jusqu'à $U/V_0 \approx 40$. L'écoulement accroît ainsi fortement la vitesse de

propagation du front jusqu'à un facteur 8, mais l'efficacité de ce processus diminue régulièrement comme le montre la concavité de la courbe. Ceci correspond au régime de Hele-Shaw étudié précédemment [5]. En revanche, pour des vitesses d'écoulement plus importantes, i.e. $U/V_0 > 40$, une forte et soudaine augmentation de la vitesse effective du front survient. Elle coïncide avec un changement de régime hydrodynamique corrélé à un changement de type de propagation (Fig. 2). L'écoulement a alors perdu son caractère plan suite à l'apparition d'écoulements secondaires dans la direction de l'axe des vortex. La transition 2D/3D de l'écoulement s'est ainsi accompagnée d'un effet très favorable à la propagation effective du front.

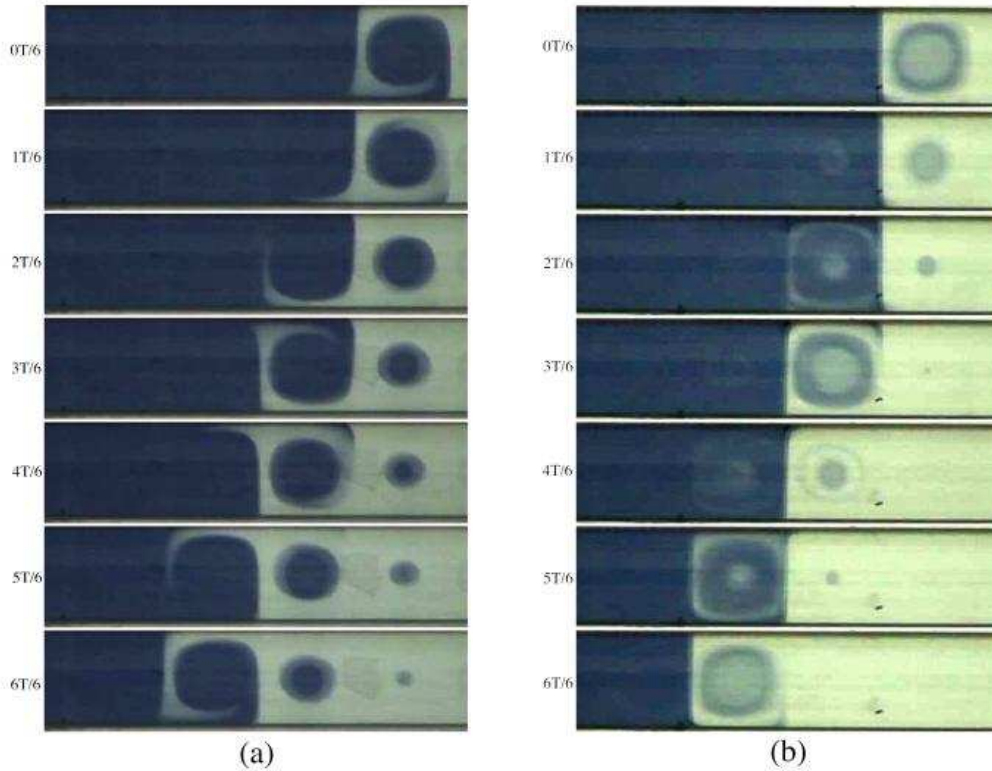


Fig. 2. Séquences typiques de propagation du front en présence d'écoulements à vitesse modérée (a) ou élevée (b). Le front se propage de droite à gauche dans le canal de dimensions 10mm x 4mm. Il apparaît connexe en (a) et non connexe en (b) suite à la transition entre écoulements 2D (a) et 3D (b).

Au sortir du régime de Hele-Shaw, les couches limites aux parois horizontales du canal se séparent et une couche non-visqueuse apparaît entre les deux. Dans cette dernière, le terme d'advection donne naissance à une force centrifuge radiale qui se trouve compensée par le gradient de pression : $(\mathbf{U} \cdot \nabla)\mathbf{U} \sim \frac{1}{\rho} \nabla P$. Cette force cesse cependant d'exister dans la couche limite car l'écoulement tombe à zéro pour respecter la condition de non glissement à la paroi. En revanche, le gradient de pression garde sa valeur induisant ainsi des écoulements centripètes. Par conservation de la masse, ces écoulements remontent ensuite le long de l'axe du vortex dans la zone non-visqueuse. Superposés à l'écoulement primaire, ils donnent naissance à un mouvement global en spirales le long de l'axe du vortex. Ce mécanisme, analogue au pompage d'Eckman pour les écoulements géophysiques, est générique à de nombreuses situations de vortex confinés [7]. Au quotidien, il est notamment responsable de l'advection de particules (e.g. de thé) au centre d'une tasse que l'on vient de remuer. Cependant, en cas de confinement trop important, la

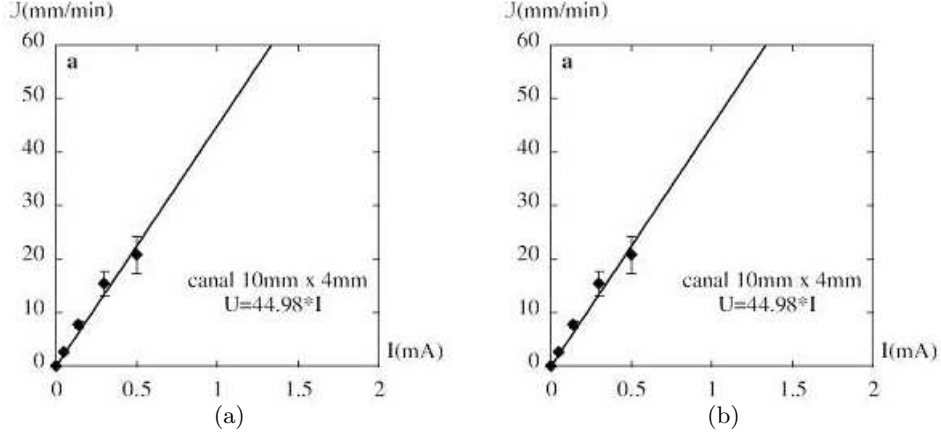


Fig. 3. (a) Variation linéaire de la vitesse d'écoulement U avec l'intensité I du courant, pour des vitesses U modérées. (b) Variation de la vitesse réduite de propagation, V_f/V_0 , avec la vitesse réduite de l'écoulement, U/V_0 . L'augmentation est régulière mais concave jusqu'à $U/V_0 \approx 40$. Au delà, une forte augmentation de vitesse effective est notable, en conjonction avec un changement de régime hydrodynamique (Fig. 2b).

zone non-visqueuse disparaît et les écoulements secondaires avec elles. On retrouve alors le régime de Hele-Shaw.

On s'aperçoit ainsi que le degré de confinement et la nature du régime hydrodynamique mêle la géométrie du vortex et l'amplitude de son écoulement. Une analyse qualitative simple permet de déterminer leur lien et de situer la transition entre régimes. D'après la description précédente, la transition a lieu pour $\delta \sim d/2$ où δ représente l'épaisseur de la couche limite et d l'épaisseur du canal. Elle se caractérise alors par l'équilibre entre inertie, forces visqueuses et gradient de pression. En notant ν la viscosité cinématique du fluide, ceci conduit en particulier, pour la vorticit ,   :

$$(\mathbf{U} \cdot \nabla) \boldsymbol{\Omega} \sim (\boldsymbol{\Omega} \cdot \nabla) \mathbf{U} + \nu \Delta \boldsymbol{\Omega} \quad (1)$$

soit, en projection sur l'axe z des vortex :

$$(\mathbf{U}_h \cdot \nabla_h) \Omega_z + U_z \frac{\partial \Omega_z}{\partial z} \sim \Omega_z \frac{U_z}{\partial z} + \nu \Delta \Omega_z \quad (2)$$

o  les composantes horizontales sont exprim es par l'indice h et les composantes verticales par l'indice z .

Le scaling des d riv es est donn  par la g om trie. Ainsi, $\partial/\partial z \sim 1/\delta$, $\partial/\partial x \sim 1/(L_x/2)$ et $\partial/\partial y \sim 1/(L_y/2)$. Ceci conduit, avec $U_h \equiv U$ et $L_x = L_y$,   :

$$\frac{U}{L_y} \Omega_z + U_z \frac{\Omega_z}{\delta} \sim \Omega_z \frac{U_z}{\delta} + \nu \frac{\Omega_z}{\delta^2} \quad (3)$$

Par ailleurs, la relation d'incompressibilit  du fluide implique $U/L_y \sim U_z/\delta$, aboutissant ainsi, avec la relation (3), au scaling : $U/L_y \sim \nu/\delta^2$.

Le crit re de transition hydrodynamique, $\delta \sim d/2$, conduit ainsi   un changement de r gime pour une amplitude d' coulement U_{HS} v rifiant le scaling :

$$U_{HS} \sim \frac{L_y \nu}{d^2} \quad (4)$$

Une analyse plus d taill e serait n cessaire pour d terminer le pr facteur. Ind pendamment de celui-ci, cette relation d crit cependant la relation entre la g om trie du canal et la vitesse de l' coulement U_{HS}   la transition entre r gimes. Cette derni re devrait ainsi  voluer proportionnellement   la largeur du canal et   l'inverse du carr  de son  paisseur. Des exp riences sont en cours sur des canaux de diverses profondeurs afin de tester cette relation.

4 Conclusion

La propagation d'un front de réaction-diffusion en présence d'un écoulement contrôlé a été étudiée expérimentalement en géométrie confinée. L'écoulement consiste en une rangée de vortex contrarotatifs induits par électroconvection. Pour des vitesses d'écoulement modérées, le régime hydrodynamique est celui de Hele-Shaw constitué d'un écoulement plan. La vitesse moyenne d'avancement du front, résultat de la compétition entre les échelles de temps d'advection, de réaction, de diffusion, présente alors une évolution concave avec l'intensité des vortex. Une précédente étude a montré qu'elle résultait d'une propagation du front le long de la trajectoire minimisant le temps de parcours dans la structure d'écoulement imposée [5]. Pour des vitesses d'écoulement plus élevées, nous avons constaté ici une brusque augmentation de vitesse moyenne du front corrélée à un changement fondamental de son type de trajectoire. Ceci s'explique par la transition d'un écoulement plan de Hele-Shaw à un écoulement tri-dimensionnel, suite à l'apparition d'écoulements secondaires le long de l'axe des vortex. Le seuil d'apparition de ces écoulements peut être déterminé en considérant la séparation des couches limites en épaisseur, signe de la fin du régime de Hele-Shaw. Ceci conduit à une loi d'échelle reliant l'intensité critique des vortex aux facteurs géométriques tels la largeur et l'épaisseur du canal considéré. Des expériences supplémentaires dans des canaux de dimensions variables sont nécessaires afin de la vérifier.

Cette étude révèle la sensibilité des fronts de réaction-diffusion à la structure des écoulements dans lesquels ils se propagent. En particulier, ces fronts sont apparus ici comme des révélateurs très fins de transition hydrodynamique, par la trajectoire prise et par la vitesse effective qui en a résulté. D'un côté, ceci souligne toute l'importance de la géométrie des écoulements envers l'efficacité du transport propagatif. D'un autre côté, cela suggère qu'un front de réaction-diffusion pourrait être utilisé pour dévoiler les structures fines d'un écoulement complexe, propriété potentiellement intéressante par exemple en microfluidique.

Références

1. F. SAGUES & I.R. EPSTEIN, Nonlinear Chemical dynamics, *Dalton Transactions*, 1201-1217 (2003).
2. M. ABEL, A. CELANI, D. VERGNI & A. VULPIANI, Front propagation in laminar flows, *Physical Review E*, **64**, 6307 (2001) — M. LECONTE, J. MARTIN, N. RAKOTOMALALA & D. SALIN, Pattern of reaction diffusion fronts in laminar flows, *Physical Review Letters*, **90**, 128302 (2003) — P. D. ROONEY, B. D. HASLAM & N. O. RHYS, Front propagation rates in randomly stirred media, *Physical Review Letters*, **74**, 3804 (1995).
3. M. ABEL, M. CENCINI, D. VERGNI & A. VULPIANI, Front speed enhancement in cellular flows, *Chaos*, **12**, 481-488 (2002) — M. CENCINI, A. TORCINI, D. VERGNI & A. VULPIANI, Thin front propagation in steady and unsteady cellular flows, *Physics of Fluids*, **15**, 679-688 (2003) — N. VLADIMIROVA, A. KISELEV, P. CONSTANTIN, O. RUCHAYSKIY & L. RYZHIK, Flame enhancement and quenching in fluid flows, *Combustion Theory Modelling*, **7**, 2003, 485-508 (2003).
4. M.S. PAOLETTI & T.H. SOLOMON, Experimental studies of front propagation and mode-locking in an advection-reaction-diffusion system, *Europhysics Letters*, **69**, 819-825 (2005) — M.S. PAOLETTI & T.H. SOLOMON, Front propagation and mode-locking in an advection-reaction-diffusion system, *Physical Review E*, **72**, 046204 (2005).
5. A. POCHEAU & F. HARAMBAT, Effective front propagation in steady cellular flows : A least time criterion, *Physical Review E*, **73**, 065304 (2006) — A. POCHEAU & F. HARAMBAT, Front propagation in a laminar cellular flow : Shapes, velocities, and least time criterion, *Physical Review E*, **77**, 036304 (2008).
6. D.M. WEITZ & I.R. EPSTEIN, Spatial waves in the reaction of chlorite with iodide, *Journal of Physical Chemistry*, **88**, 5300-5304 (1984).
7. T. H. SOLOMON & I. MEZIC, Uniform resonant chaotic mixing in fluid flows, *Nature*, **425**, 376-380 (2003).