

Influence d'une transition hydrodynamique sur la propagation d'un front de réaction-diffusion

Simona Bodea¹ & Alain Pocheau¹

IRPHE, CNRS & Aix-Marseille Université, 49 rue Joliot-Curie, B.P. 146, Technopôle de Château-Gombert, F-13384 Marseille, Cedex 13, France
bodea@irphe.univ-mrs.fr

Résumé. Cette étude expérimentale porte sur la propagation d'un front de réaction-diffusion dans un écoulement cellulaire composé d'une rangée de vortex contra-rotatifs. Le front est obtenu par la réaction autocatalytique chlorite-iodure et l'écoulement par électroconvection. Nous mettons en évidence ici l'influence d'une transition hydrodynamique sur la propagation du front. En particulier, le passage d'un écoulement bi-dimensionnel à tri-dimensionnel s'avère être néfaste pour le transport en stoppant l'augmentation de vitesse de propagation avec l'intensité de l'écoulement. Ceci révèle la grande sensibilité des fronts de réaction à la structure des écoulements.

Abstract. We experimentally study the propagation of a chemical reaction front in a chain composed of counter-rotating vortices. The reaction front is induced by an autocatalytical reaction and the flow is generated by electroconvection. We evidence here the effect of a hydrodynamical transition on the front propagation. In particular, the flow evolution from two dimensional to three dimensional appears to be detrimental for the transport since the front speed surprisingly stops increasing with the flow speed. This points out the sensitivity of the front propagation to the flow structure.

1 Introduction

Les fronts de réaction-diffusion se rencontrent dans divers systèmes physiques, chimiques et biologiques comme, par exemple, la propagation des feux de forêt ou des infections, la progression du trou de la couche d'ozone ou encore le développement du phytoplancton [1,2]. Souvent, ils se trouvent soumis à un écoulement dont les propriétés de transport advectives s'avèrent très efficaces devant celles de réaction-diffusion. De ce fait, il apparaît essentiel de déterminer comment un écoulement influence la propagation effective d'un front au travers de son amplitude et de sa structure.

Récemment, la propagation de fronts dans des écoulements cellulaires a été très étudiée du point de vue théorique [3] et expérimental, en utilisant un écoulement stationnaire [4] ou un écoulement dépendant de temps [5]. Ces écoulements sont alors en général représentés par un écoulement modèle à deux dimensions (2D), composé d'une chaîne de vortex contra-rotatifs.

Les études expérimentales de propagation de front dans un écoulement stationnaire 2D cellulaires ont montré que la vitesse de propagation du front de réaction était augmentée sensiblement, de manière non-linéaire [4]. Cette non-linéarité résulte de la compétition entre les diverses échelles de temps d'advection, de réaction, de diffusion. En particulier, il apparaît que le front de réaction-diffusion suit, parmi les trajectoires possibles, celle qui lui permet d'optimiser le temps de parcours dans la structure imposée. Ceci souligne bien le rôle essentiel joué par la structure advective.

Notre étude s'inscrit dans la continuité de ces résultats et s'interroge en particulier sur l'effet d'une évolution propre des structures advectives sur la propagation du front de réaction-diffusion.

Parmi les évolutions possibles, le changement de dimension mérite une attention accrue. Dans le cas des forts régimes turbulents, comme en combustion turbulente, le transport réactif croît avec l'augmentation des modes et des amplitudes des composantes de l'écoulement. En revanche, à plus faible régime, comme celui considéré ici, les structures d'écoulement peuvent donner lieu à des barrières de transport et donc à des problématiques différentes. En particulier, dans l'étude menée ici, une transition hydrodynamique entre un écoulement cellulaire plan 2D et un écoulement cellulaire tridimensionnel (3D) conduit à un

changement de dimension de l'écoulement. Une des questions importantes est alors de savoir si ce passage à un écoulement 3D, de dimension et d'intensité plus élevée, conduit comme souvent à une augmentation du transport réactif et si oui via quel mécanisme. Contrairement au comportement attendu, nous allons montrer ici que le transport se voit en fait pénalisé par l'apparition d'écoulements 3D.

Par ailleurs, l'écoulement de type électroconvectif utilisé pour notre étude suscite de nombreux intérêts notamment vis à vis de sa transition à la tridimensionnalité [6,7]. Le front de propagation peut alors s'avérer un très bon révélateur de telles transitions et conduire à une caractérisation fine des effets 3D. Il permettra ainsi de préciser dans quelle mesure les modélisations 2D utilisés sont pertinentes ou non vis à vis d'une réalité qui est génériquement 3D.

2 Expérience

Toutes nos expériences ont été effectuées dans un canal fermé, de forme rectangulaire et de faible épaisseur d . Plusieurs dimensions ont été considérées lors de l'étude : largeur $L_y = 10$ ou 15 mm, épaisseur $d = 3$ ou 4 mm et longueur constante 400 mm. Le front de réaction-diffusion est obtenu à partir de la réaction auto catalytique chlorite-iodure [8]. La concentration des ions chlorite et iodure est fixée à $3,75 \cdot 10^{-4}$ et $3 \cdot 10^{-4}$ mole/l 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 qui, en présence des ions I_2 et I^- , forme un complexe colorant la solution en bleu. Lorsque la réaction a lieu, elle produit une chute brutale en I_2 et I^- , faisant ainsi disparaître la coloration bleue. De cette manière, le front de réaction sépare une zone colorée en bleu (où la réaction n'a pas encore eu lieu) d'une zone incolore (où la réaction a déjà eu lieu) (Fig. 1-gauche).

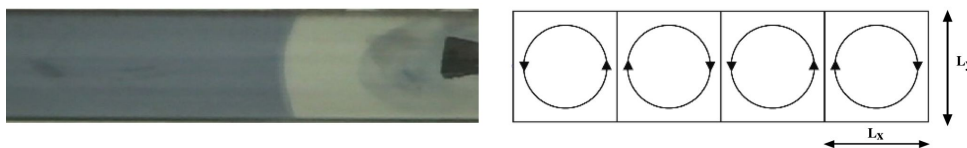


Figure 1. A gauche : vue de dessus du front chlorite-iodure en absence d'écoulements. Le front se propage de droite à gauche. A droite : schéma de l'écoulement cellulaire. $L_x = L_y = 10$ ou 15 mm.

L'écoulement est obtenu par électroconvection grâce à une rangée d'aimants de même largeur que le canal et placés sous celui-ci. Leur champ magnétique est vertical mais de sens alterné. La taille $L_x \times L_y \times d$ des aimants est $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ ou $15 \text{ mm} \times 15 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$. Lorsqu'un courant électrique se propage entre les deux extrémités du canal, les forces de Laplace induites donnent naissance à une rangée de vortex contra-rotatifs (Fig. 1-droite). Les courants appliqués sont de l'ordre du mA et les vitesses d'écoulement obtenues varient entre 10 et 130 mm/min. Ceci correspond à des nombres de Reynolds $Re = UL/\nu$ allant de 0 à 25 maximum, avec $L = L_x = L_y$.

Pour des vitesses d'écoulement modérées, le régime est de type Hele-Shaw avec des couches limites aux parois horizontales superposées et occupant toute l'épaisseur du fluide. On s'attend dans ce cas à un écoulement plan 2D, avec un profil de type Poiseuille. La vitesse de l'écoulement est alors maximale en $z^* = d/2$ ¹. Dans un tel écoulement, un front de réaction-diffusion sera advecté de manière différente suivant z mais maximale en $z = z^*$, conduisant ainsi a priori à un point le plus avancé en $z = z^*$. Pour cette raison, nous considérerons dans la suite $U(x, y)$ à cette côte, $U(x, y) = U(x, y, z^*)$, et nous appellerons U sa valeur maximale dans un vortex.

L'avancée du front est enregistrée par un caméscope placé au-dessus du canal et de résolution 1024×768 pixels. Ses enregistrements nous permettent de mesurer les différentes vitesses de l'étude, à savoir, la

1. En réalité, la décroissance en z du champ magnétique B induit un léger décalage du maximum de vitesse d'écoulement à une côte z^* légèrement plus petite que $d/2$, sans conséquence majeure pour l'étude.

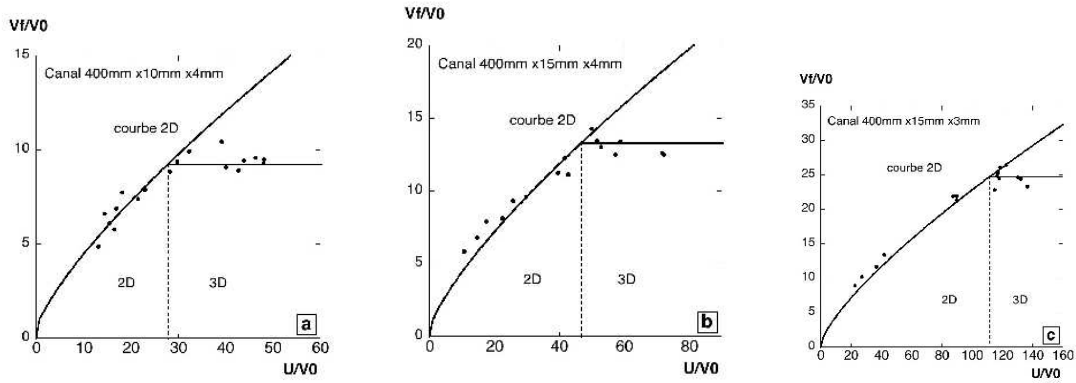
vitesse propre du front V_0 , la vitesse d'écoulement U et la vitesse moyenne d'avancement du front V_f . La vitesse propre V_0 , hors écoulement ou courant électrique et à $T = 20^\circ\text{C}$ (maintenue constante), est 1,2 mm/min. Comme un courant électrique modifie les transports ioniques, il agit aussi sur V_0 par son intensité I . Cet effet a été étalonné et pris en compte de manière systématique dans l'étude.

La vitesse de l'écoulement U est mesurée en utilisant le front comme traceur. A l'intérieur d'une cellule et pour un écoulement plan 2D, le front adopte une forme de langue qui se propage le long d'une ligne de courant à vitesse $U + V_0$, ainsi que vers le centre de la cellule à vitesse V_0 . La trajectoire décrite par la tête du front à l'intérieur du vortex est alors de type spirale logarithmique. Elle permet ainsi de remonter à la vitesse de rotation solide de l'écoulement puis à la vitesse de l'écoulement. Tant que les vitesses d'écoulement restent modérées, les non-linéarités advectives restent négligeables. La vitesse de l'écoulement croît alors, comme les forces de Laplace, avec l'intensité I du courant de manière linéaire et avec des lignes de courant inchangées. Ces évolutions linéaires $U(I)$ ont été déterminées pour chaque canal par le procédé décrit précédemment. En revanche, dans le régime 3D, il ne sera plus possible de mesurer ainsi la vitesse de l'écoulement. Des études [6] ont cependant montré que lors de ce passage à la tridimensionnalité, et pour des Re pas trop importants, la composante horizontale de l'écoulement ne change pas d'évolution et varie ainsi toujours linéairement avec I et avec la même pente. Ceci nous a permis de prolonger la courbe $U(I)$ mesurée expérimentalement au domaine 3D.

La vitesse du front, V_f , est définie comme la vitesse moyenne d'avancement de la tête du front pendant une période, i.e. sur deux vortex. Pour une meilleure précision, elle est mesurée sur quelques périodes. Les mesures de V_0 , U et V_f ont permis de relier la vitesse effective réduite V_f/V_0 à l'intensité réduite d'écoulement U/V_0 , et de quantifier ainsi l'influence de l'advection sur la propagation du front.

3 Régimes de propagation

La figure 2a, relative à un canal de largeur 10 mm et d'épaisseur 4 mm, montre deux régimes de propagation. Pour des vitesses U/V_0 plus petites qu'une vitesse seuil $U_c/V_0 = 28$, la vitesse du front montre une augmentation concave avec la vitesse de l'écoulement. Ceci correspond à la propagation du front en présence d'un écoulement 2D, de type Hele-Shaw.



(a) $L_x = L_y = 10$ mm, $d = 4$ mm (b) $L_x = L_y = 15$ mm, $d = 4$ mm (c) $L_x = L_y = 15$ mm, $d = 3$ mm

Figure 2. Variation de la vitesse de propagation réduite du front, V_f/V_0 , en fonction de la vitesse réduite de l'écoulement, U/V_0 , pour différents canaux. Une augmentation concave est suivie d'une stagnation. Ce changement est corrélé à un changement de régime hydrodynamique et de trajectoire du front.

De manière très surprenante, au delà de U_c/V_0 , la vitesse du front V_f/V_0 cesse d'augmenter avec la vitesse d'écoulement et stagne. Nous verrons que ce régime correspond à un écoulement devenu 3D, avec

des écoulements secondaires transverses aux vortex. Le même type de variation de vitesse de propagation est mesuré pour les deux autres canaux avec des vitesses seuil différentes (Figs 2b et 2c).

Nous allons décrire par la suite ces deux régimes de propagation afin d'apporter des éléments de réponse quant à la compréhension de ce brusque changement. La figure 3 gauche, présente une séquence typique de propagation du front de réaction dans un écoulement plan obtenu à basse vitesse et représentatif de la propagation jusqu'à la vitesse seuil U_c . Les images montrent une propagation connexe du front de réaction, bien compatible avec une propagation de la tête du front dans le plan $z = z^*$. La propagation est alors composée de zones d'avancement rapide, là où l'écoulement advecte le front, et de zones de propagation lentes, où le front avance à sa vitesse propre V_0 normalement à l'écoulement. La vitesse finale d'avancement du front dans cette structure sera donnée par la compétition entre ces deux phases et leurs poids respectifs dans la propagation. Ce processus conduit à la variation non-linéaire observée pour la vitesse du front, bien en accord avec le modèle d'optimisation à deux dimensions proposé précédemment [4].

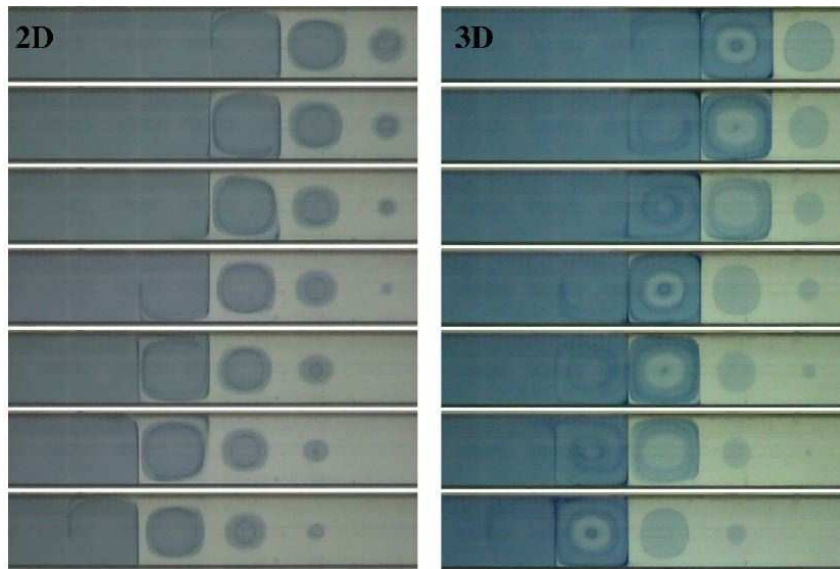


Figure 3. Séquence typique de propagation du front en présence d'écoulement. Gauche : vitesse modérée (2D). Droite, vitesse élevée (3D). Le front se propage de droite à gauche dans le canal de dimensions $10\text{mm} \times 4\text{mm}$.

Lorsque la vitesse d'écoulement augmente, les images de propagation du front (Fig. 3 droite) montrent l'apparition de domaines non connexes. Ceci suggère que la propagation de la tête du front ne se fait plus dans un seul plan, mais en explorant l'épaisseur du canal, conduisant ainsi sur les images intégrées en z à des intensités variables donnant l'impression de front non connexe. Ce changement dans la propagation est consistant avec la présence d'écoulements en épaisseur et donc d'un écoulement devenu 3D. Par rapport au régime précédent, nous observons que la contamination de l'intérieur d'une cellule se fait de manière bien différente. Au lieu d'une progression radiale à la vitesse V_0 de la périphérie vers le centre, le front est cette fois-ci advecté d'abord vers le centre de la cellule qu'il contamine avant que la périphérie ne soit entièrement brûlée.

4 Nature de la tridimensionnalité et mécanismes de propagation

Quelle peut être l'origine de cette transition hydrodynamique ? Quand les vitesses d'écoulement sont faibles, le fluide est dans le régime de Hele-Shaw décrit précédemment où l'écoulement est 2D. Lorsque la vitesse de l'écoulement augmente, les deux couches limites aux parois horizontales se séparent. Entre les

deux, une couche non-visqueuse apparaît dans laquelle le terme d'advection induit une force centrifuge radiale compensée par les gradients de pression : $(\mathbf{U} \cdot \nabla)\mathbf{U} \sim \frac{1}{\rho}\nabla P$. Cette force disparaît cependant aux abords des parois du canal car \mathbf{U} s'y annule, de sorte que les gradients de pression ne sont alors plus compensés. Comme la diffusion visqueuse ne peut les compenser non plus, des écoulements radiaux centripètes sont ainsi générés qui, par conservation de masse, remontent le long de l'axe du vortex dans la zone non-visqueuse. Superposés à l'écoulement primaire, ces écoulements secondaires donnent ainsi naissance à un mouvement global en spirale le long de l'axe du vortex.

Une analyse qualitative simple nous permet de quantifier la transition à la tridimensionnalité. En désignant par δ l'épaisseur naturelle de la couche limite à une paroi, la transition doit avoir lieu pour $\delta \sim d/2$. Elle se caractérise alors par : inertie \sim forces visqueuses \sim gradients de pression, soit, pour la vorticit  Ω , par : inertie \sim forces visqueuses, i.e. $(\mathbf{U} \cdot \nabla)\Omega \sim \nu\Delta\Omega$. En projetant cette  quation sur l'axe Oz on obtient la relation $(\mathbf{U}_h \cdot \nabla_h)\Omega_z + w\frac{\partial\Omega_z}{\partial z} \sim \nu\Delta\Omega_z$, o  les indices h et z indiquent les composantes horizontales et verticales et w la composante verticale de l' coulement.

Exprimons maintenant le scaling des diff rents termes au travers de celui des d riv es. A la paroi, $\frac{\partial}{\partial z} \sim \frac{1}{\delta/2}$ et   la fronti re de la couche limite $\frac{\partial}{\partial z} \sim 0$, soit en moyenne, $\frac{\partial}{\partial z} \sim \frac{1}{\delta}$. Pour les directions horizontales, on note que la zone inertielle correspond au vortex diminu  de ses couches limites aux parois. Ainsi $\frac{\partial}{\partial x} \sim \frac{1}{L_x/2}$ et $\frac{\partial}{\partial y} \sim \frac{1}{L_y/2-\delta}$ vu la couche limite d' paisseur δ   la paroi verticale du canal. Comme $L_x = L_y$ la seconde variation est la plus forte. Ce scaling des d riv es donne ainsi dans l' quation de la vorticit  verticale $\frac{U}{L_y/2-\delta}\Omega_z + w\frac{\Omega_z}{\delta} \sim \nu\frac{\Omega_z}{\delta^2}$ et dans celle d'incompressibilit  $\frac{U}{L_y/2-\delta} \sim \frac{w}{\delta}$. Au total, on obtient ainsi : $\frac{U}{L_y/2-\delta} \sim \frac{\nu}{\delta^2}$. La s paration des couches limites survient pour $\delta \sim d/2$, soit pour $U_c \sim \frac{(L_y-d)\nu}{d^2}$. Cette relation montre ainsi la d pendance de la transition et de sa vitesse seuil U_c   la g om trie du canal. Ces seuils, d termin s dans les trois diff rents canaux, s'av rent en tr s bon accord avec cette expression (Fig. 4).

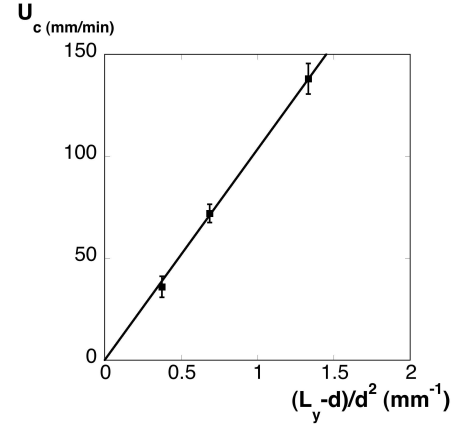


Figure 4. D pendance de la vitesse seuil d' coulement U_c avec $\frac{(L_y-d)}{d^2}$. Les points exp rimentaux sont ajust s par une droite de pente 103 mm²/min.

Apr s la transition, l' coulement peut  tre d crit comme compos  de l' coulement de base 2D et d'un  coulement secondaire d'intensit  croissante avec la distance   la transition. Lorsque le front de r action,  tal  dans la profondeur z du canal, se propage dans cet  coulement 3D, son point le plus en avant ne se trouve a priori plus en z^* comme il l' tait dans le cas 2D. En effet, la pr sence des  coulements secondaires transverses semble le pousser   changer de c te lors de sa propagation (Fig. 5). Ceci est confirm  par des exp riences r alis es en filmant la propagation de cot  dans un canal en verre. Ainsi la figure 5 montre   titre comparatif l'avancement de la t te du front juste apr s le passage dans une nouvelle cellule dans les cas 2D et 3D respectivement. Dans le cas 2D, la t te du front se propage bien en accord avec un profil de Poiseuille   une hauteur  gale   z^* o  $U(z)$ est maximal [?]. Dans le cas 3D, la propagation de cette t te du front ne change pas de nature, mais se propage   une c te z_1 l g rement plus grande que pr c demment. Ceci conduit   penser que le front 'voit' alors une vitesse d' coulement horizontale plus faible $U(z_1) < U(z^*)$. Sa vitesse moyenne d'avancement en est alors affect e et ne cro t plus avec U comme dans le r gime 2D.

Ceci sugg re que l'apparition du r gime 3D ne modifie pas fortement le m canisme de propagation du front de vortex en vortex mais fait se d caler en z le point le plus en avant du front, conduisant ainsi   un abaissement de V_f par un abaissement effectif de l' coulement plan rencontr . Dans ce sc nario, le fait que V_f/V_0 reste quasiment constant alors que U/V_0 continue d'augmenter, signifie que le d calage en z de l'avant du front augmente de mani re continue avec U . L'origine de ce d calage reste   pr ciser.

Un autre mécanisme serait cependant envisageable : lors de son excursion en z , l'avant du front pourrait être également éloigné de la séparatrice et mettre ainsi plus de temps à la traverser. Les expériences réalisées sur le coté, dans une gamme réduite de paramètres, ne semble pas valider cette hypothèse. Des expériences supplémentaires, en réalisant une observation sur le coté, pourraient permettre de conclure si ce genre de mécanisme joue un rôle important dans le changement de régime de propagation observé.

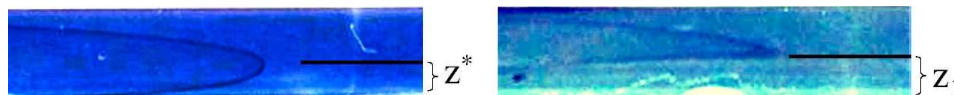


Figure 5. Vue de coté de l'avancement de la tête du front. A gauche l'écoulement est 2D et le front se propage à $z = z^*$. A droite, l'écoulement est 3D et le front se propage maintenant à $z = z_1 > z^*$.

5 Conclusion

Nous avons étudié la propagation d'un front de réaction-diffusion en présence d'un écoulement cellulaire, en géométrie confinée de Hele-Shaw. A vitesse modérée, les vortex présentent un profil de Poiseuille d'écoulement plan. A plus haute vitesse, ils développent des écoulements secondaires transverses qui brisent la bi-dimensionnalité. Cette transition conduit à stopper l'augmentation de la vitesse du front avec l'intensité des vortex. Le seuil d'apparition des écoulements secondaires peut être déterminé en considérant la séparation des couches limites dans l'épaisseur du canal. Ceci conduit à une loi d'échelle reliant l'intensité critique des vortex aux paramètres géométriques du canal et qui a été validée par nos expériences.

Cette étude révèle ainsi la sensibilité des fronts de réaction à la structure des écoulements dans lesquels ils se propagent, faisant de ceux-ci des révélateurs très fins de transitions hydrodynamiques. Ceci suggère qu'un front de réaction pourrait être utilisé pour dévoiler les structures fines d'un écoulement complexe, propriété potentiellement intéressante par exemple en microfluidique. Par ailleurs, nous avons montré que, de manière assez inattendue, l'apparition d'un écoulement structuré 3D pouvait pénaliser le transport. Cette propriété pourrait se révéler intéressante dans les situations où on désire limiter le transport en présence d'un écoulement d'intensité croissante.

Références

1. F. SAGUES AND I.R. EPSTEIN, Nonlinear Chemical dynamics, *Dalton Trans.*, 1201-1217 (2003).
2. T. TÉL, A DE MOURA, C. GREBOGI, G. KÁROLYI, Chemical and biological activity in open flows : a dynamical system approach, *Physics Reports*, **413**, 91-196 (2005)
3. M. ABEL, M. CENCINI, D. VERGNI & A. VULPIANI, Front speed enhancement in cellular flows, *Chaos*, **12**, 481-488 (2002)
N. VLADIMIROVA, A. KISELEV, P. CONSTANTI, O. RUCHAYSKIY, & L. RYZHIK, Flame enhancement and quenching in fluid flows, *Combustion Theory Modelling*, **7**, 485-508 (2003)
4. A. POCHÉAU & F. HARAMBAT, Effective front propagation in steady cellular flows : A least time criterion, *Physical Review E*, **73**, 065304 (2006)
5. M. S. PAOLETTI & T. H. SOLOMON, Front propagation and mode-locking in an advection-reaction-diffusion system, *Physical Review E*, **72**, 046204 (2005)
6. D. H. KELLEY & N. T. OUELLETTE, Onset of three-dimensionality in electromagnetically driven thin-layer flows, *Physics of Fluids*, **23**, 045103 (2011)
7. M. P. SATIJJN, A. W. CENSE, R. VERZICCO, H. J. H. CLERCX & G. J. F. VAN HEIJST, Three-dimensional structure and decay properties of vortices in shallow fluid layers, *Physics of Fluids*, **13**, 1932-1945 (2011)
8. D. M. WEITZ & I. R. EPSTEIN, Spatial waves in the reaction of chlorite with iodide, *Journal of Physical Chemistry*, **88**, 5300-5304 (1984)