19 février 01

Transferts Thermiques dans les fluides.

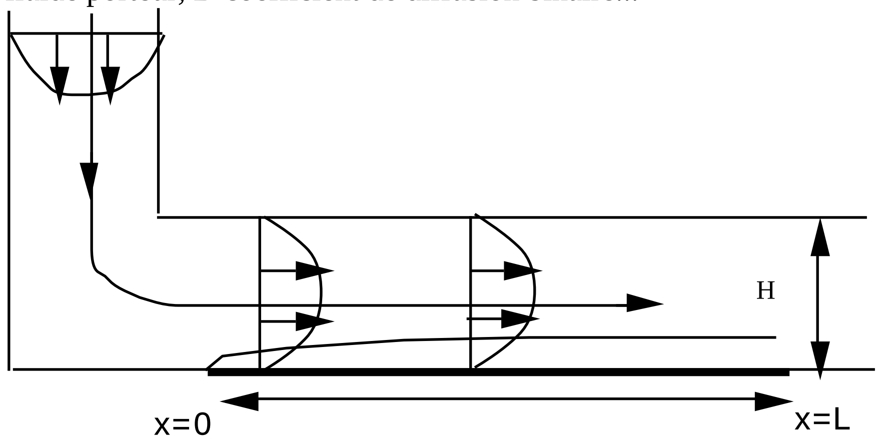
Cours **MF202**

Durée: 2 heures

Tout document personnel autorisé.

L'objet de ce problème est l'étude d'un réacteur chimique appelé BIAcore 2000. Ce réacteur est utilisé de manière courante dans le milieu de la recherche biomédicale. Il permet de mesurer des vitesses de réactions chimiques. Ces réactions sont principalement des réactions d'adhésion de macromolécules biologiques sur la paroi (agrégation des plaquettes du sang sur la paroi endothéliale, interactions ADN/ protéine...).

Concrètement le fluide (de l'eau purifiée tamponée...) qui transporte les réactifs appelés "analytes" (les macromolécules), transporte initialement une concentration homogène d'analyte c_0. Il s'écoule dans un canal tortueux et rencontre (en x=0) une portion de la paroi du bas (en y=0 et qui s'étend à partir de x=0 jusqu'en x=L, H est la hauteur du réacteur) où a été disposée uniformément au temps t=0 une concentration surfacique de ligands appelés "récepteurs", on note "d(x,t)" la concentration surfacique (au temps initial $d(x,t=0)=d_0$). La réaction chimique se produit uniquement sur cette surface que l'on appelle le "chip", le produit "b" s'y forme (de concentration surfacique b(x,t) avec b(x,t=0)=0).
L'écoulement est supposé incompressible, stationnaire 2D. L'écoulement est en régime établi de Poiseuille. Le fluide est non pesant. Les notations sont classiques μ viscosité, ρ densité du fluide porteur, D coefficient de diffusion binaire...



Les questions sont *assez* indépendantes.

1ère partie. Écoulement de base.

1.1. On suppose que sur le réacteur le profil des vitesses est invariant par translation, montrer rapidement que celui ci peut s'écrire sous la forme $(u(x,y),\ v(x,y))=(U_0 \bar{u},\ 0)$ avec :

$$\bar{u} = \bar{y}(1-\bar{y}),$$

définir la jauge de u et de y en fonction de H, du gradient de pression longitudinal constant imposé noté Π et de μ. On pose $Re=\rho U_0 H/\mu$.

1.2. Dans le cas du Biacore 2000, Re vaut environ 1, cela change-t'il le résultat précédent? Cela permet-il d'expliquer que malgré la forte déviation de l'écoulement le profil de Poiseuille reste valide?

2ème partie. Réactions chimiques, adimensionnement.

2.1. Soit c(x,y,t) la concentration (supposée petite) du réactif par rapport au fluide. Écrire la conservation instationnaire de cette concentration compte tenu de la loi de Fick .

2.2. En adimensionnant cette équation avec L pour x et H pour y et L/U_0 pour le temps, faites apparaître un nombre de Péclet massique (supposé ni petit ni grand pour l'instant). Quel est la jauge de la concentration c? Comme dans le BIAcore L=2mm, H=0.05mm en déduire ce que devient cette équation si $(H/L)\ll 1$.

2.3. Les parois du réacteur (sauf la partie réactive $0<x<L$) sont non réactives, donc le flux y est nul. Montrer qu'en amont du "chip" $c=c_0$ constante est solution de l'équation du transport de c.

2.4. En revanche sur le "chip", l'analyte c va réagir à la surface selon la réaction suivante:

$$c(x,0,t) + d(x,t) \rightarrow b(x,t)$$

Le complexe formé "b" reste lié à la paroi. On rappelle qu'une réaction chimique non réversible du premier ordre permet d'écrire (k constante de réaction):

$$-\frac{\partial d}{\partial t} = \frac{\partial b}{\partial t} = k\, c\, d.$$

L'apport de c est égal au flux de c à la paroi *i.e.* :

$$-D\frac{\partial}{\partial y}c(x,0,t) = \frac{\partial d}{\partial t}.$$

Soit τ l'échelle de temps associée à la réaction chimique, quelle est son expression? Exprimer la concentration adimensionnée $\bar{d}$ en fonction de celle de $\bar{b}$.

2.5 Introduire le nombre de Damkhöler à partir de l'équation du flux de c (Da est proportionel à D^{-1} par convention), dans le BIAcore $Da\gg 1$.

2.6. Montrer que puisque l'échelle de temps est imposée par la chimie et comme $\tau\gg L/V$ (c'est comme ça dans le BIAcore) la dérivée totale de la concentration se simplifie.

2.7. Conclure que le système final adimensionné est:

$$\bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c}; \qquad \frac{\partial}{\partial \bar{y}}\bar{c}(\bar{x},0,\tilde{t}) = Da\ \bar{c}\,(1-\bar{b}); \qquad \frac{\partial \bar{b}}{\partial \tilde{t}} = \bar{c}\,(1-\bar{b}).$$

Ecrire *toutes* les conditions aux limites

3ème partie. Solution de Lévêque à flux fixé

3.1. Dans cette partie, on simplifie le problème précédent en supposant que le flux est fixé à la paroi, (on suppose aussi Da>>1, Pe>>1):

$$\bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c} \qquad \text{et} \qquad \frac{\partial}{\partial \bar{y}}\bar{c}(\bar{x},0) = Da.$$

Montrer que ce problème est singulier en $\bar{y}=0$, $\bar{x}>0$ lorsque Pe>>1 (en pratique dans le BIAcore Pe>3000), conclusion?

3.2. Réécrire le problème de la question 3.1 en introduisant une nouvelle échelle transverse ε près de la paroi inférieure. Déterminer ε par moindre dégénérescence. En déduire que si le produit (Da ε) est d'ordre un, la condition de flux à la paroi ne dégénère pas.

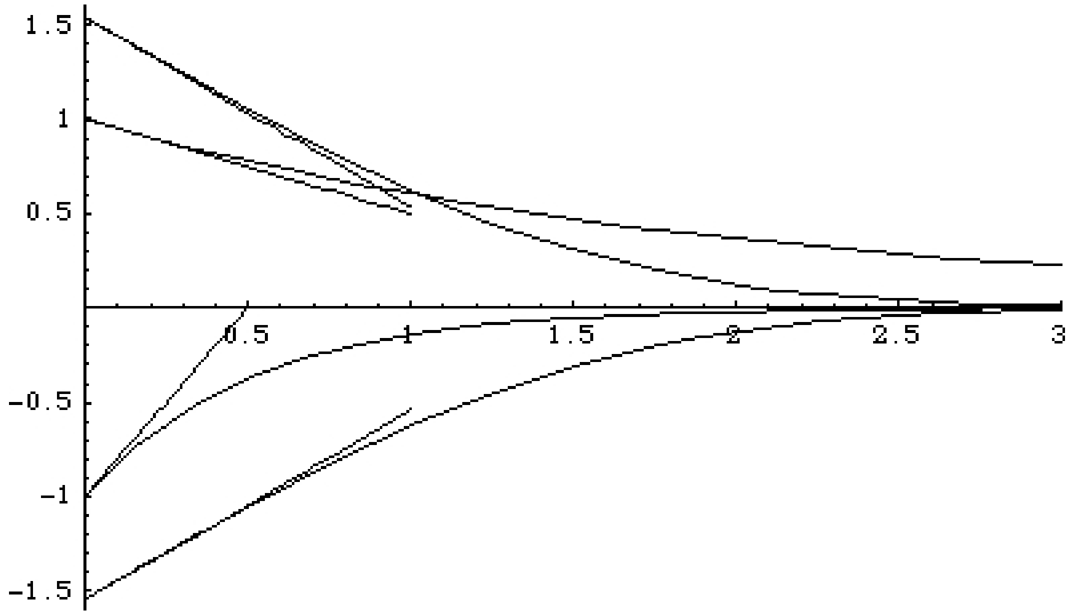


fig.: une des courbes $\theta(\eta)$ est la bonne ...

Montrer que le problème obtenu est auto semblable et que la variable de similitude est $\eta=\tilde{y}\bar{x}^{-1/3}$. Poser l'équation différentielle finale pour la variable η.

On trace ci dessus 4 courbes $\theta(\eta)$ avec leur tangente à l'origine, laquelle est la bonne et pourquoi? En déduire l'expression de $\bar{c}(\bar{x},\bar{y}=0)$.

4ème partie. modèle simple

4.1 À partir du 3. on peut introduire un coefficient d'échange pour la moyenne spatiale de c(x,0,t) le long du "chip" notée C(t) et de D(t) la moyenne de d(x,t) le long du chip, (*i.e.* on a: $C(t) = \frac{1}{L}\int_0^L c(x,0,t)\,dx$ et : $D(t) = \frac{1}{L}\int_0^L d(x,0,t)\,dx$). Avec ce coefficient:

$$-D\frac{\partial}{\partial y}c(x,0,t) = \frac{\partial d(x,t)}{\partial t}, \quad \text{s'écrit } h\,(C(t)-c_0) = \frac{\partial D(t)}{\partial t} = -(k\,(d_0-B(t))\,C(t)).$$

Remarquer que l'on fait l'approximation suivante:

$$C(t)\,D(t) = \frac{1}{L}\int_0^L c(x,0,t)\; d(x,0,t)\; dx).$$

Estimer h en fonction de Pe. (On évitera de confondre D le coefficient de diffusion et D(t) la concentration moyenne de "d"). Montrez que cette relation s'écrit (on peut l'admettre s'il ne reste pas de temps):

$$0.87\ Da^{-1}\ Pe^{1/3}(\bar{C}(\tilde{t})-1) = -(1-\bar{B}(\tilde{t}))\,\bar{C}(\tilde{t})$$

Contrairement à la partie 3, on examine cette relation lorsque $Da\ Pe^{-1/3} << 1$

en déduire $\bar{C}(\tilde{t})$ fonction de $\bar{B}(\tilde{t})$, montrer que $\bar{C}(\tilde{t}) = 1 + \varepsilon_b(\bar{B}(\tilde{t})-1) + \ldots$

que vaut ε_b?

4.2. En première approximation on suppose que:

$$\frac{\partial \bar{B}}{\partial \tilde{t}} = \bar{C}\,(1-\bar{B})$$

Résoudre pour $\bar{B}$ et tracer à $\varepsilon_b=0$ puis à l'ordre suivant. Redimensionner $\bar{B}$ pour obtenir la loi finale d'évolution en temps B(t).

Conclusion

A l'issue de ce problème, on a tous les éléments pour estimer le coefficient k. En effet, par une mesure optique, on accède à la concentration moyenne B(t) sur le "chip". On ajuste ensuite les coefficients Da, Pe et k de manière à faire coller la courbe expérimentale avec le calcul ci dessus.

Ce problème est inspiré des articles de Edwards D. A. (1999): "Estimating rate constants in a convection diffusion system with a boundary reaction", IMA J. Appl. Math., 63 , pp89 -112, et il corrige Myszka D. G., He X., Dembo M., Morton T. A. & Goldstein B. (1998) "Extending the range of rate constants available from BIAcore: interpreting mass transport-influenced binding data". Biophysical Journal, vol. 75, Aug., pp 583-594. qui présentent des résultats très favorables entre cette modélisation et l'expérience.

Éléments de Correction Réacteur Biacore 2000

1.1. Comme $\partial u/\partial x=0$, l'équation de l'incompressibilité ($\frac{\partial v}{\partial y}=0$) et les conditions d'adhérence donnent v=0. La composante radiale de l'équation de quantité de mouvement donne $\partial p/\partial y=0$, la pression ne dépend que de la variable longitudinale, d'où:

$0 = -\frac{dp}{dx} + \mu \frac{\partial^2}{\partial y^2}u$, d'où par intégration: $\Pi=-\frac{dp}{dx}$ et $u = \frac{1}{\mu}\Pi\, y(H-y)$.

L'équation précédente s'écrit $u(y)=U_0\bar{u}$, avec $\bar{u} = \bar{y}(1-\bar{y})$ $\bar{y}=y/H$ et $U_0=\frac{1}{2\mu}\Pi H^2$. Si on préfère $\Pi=\frac{2\rho U_0^2}{H\ R_e}$, $R_e=U_0H/\nu$.

1.2 Le résultat (écoulement de Poiseuille) est indépendant du nombre de Reynolds. Plus le nombre Re est petit plus rapidement sont lissées les variations de vitesses liées à la géométrie.

2.1. L'équation fondamentale est $\frac{\partial}{\partial t}(\rho c)+ \underline{\ \ }\ (\rho c\underline{u}) + \underline{\ \ }\ \underline{j} = w$. La loi de Fick pour un mélange binaire $\underline{j} = -\rho D\ \underline{\ \ }c$, comme u = u(y), v=0 et ici il n'y a pas de de réaction chimique dans l'écoulement w=0. Donc

$$\frac{\partial}{\partial t}c + u(y)\frac{\partial}{\partial x}c = D\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)c.$$

2.2. On trouve en adimensionnant la concentration avec c_0 (donnée initiale) $\bar{y}=y/H$, $\bar{x}=x/L$:

$$\frac{\partial}{\partial \bar{t}}\bar{c} + \bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c},\ Pe=U_0H^2/(DL)$$

à résoudre pour $0<\bar{x}<1$.

2.3. évident: $c=c_0$ vérifie l'équation de transport ET les conditions aux limites de flux nul sur les parois.

2.4. $-\frac{\partial d}{\partial t} = \frac{\partial b}{\partial t} = k\,c\,d$, et $-\frac{\partial d}{\partial t} = \frac{\partial b}{\partial t}$ donc d(x,t)-d(x,0)=b(x,0)-b(x,t), en posant $\tau=1/(kc_0)$

et $d = d_0\bar{d}$ (avec $d_0=b_0$), on a : $-\frac{\partial \bar{d}}{\partial \tilde{t}} = \frac{\partial \bar{b}}{\partial \tilde{t}} = \bar{c}\,\bar{d}$ et $\bar{d} = 1-\bar{b}$

2.5. $-D\frac{\partial}{\partial y}c(x,0,t) = \frac{\partial d}{\partial t} = -k\,c\,d$ donne $\frac{\partial}{\partial \bar{y}}\bar{c}(\bar{x},0,\tilde{t}) = Da\ \bar{c}\,(1-\bar{b})$, avec $Da=kHd_0/D$.

2.6 On a $\frac{\partial}{\partial \bar{t}}\bar{c} + \bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{\partial \bar{c}}{\partial \tilde{t}}\left(\frac{L}{U_0\ \tau}\right) + \bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c}$ comme comme $\tau>>L/U_0$, il ne reste que $\bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c}$. On remarque que cela ne veut pas dire que $\frac{\partial}{\partial \bar{t}}\bar{c} = 0$!

2.7. A partir de (2.2) simplifié par (2.6) et avec (2.4) et (2.5), on a le système proposé.

Le problème consiste à résoudre:

$$\bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c}; \qquad \text{et} \qquad \frac{\partial \bar{b}}{\partial \tilde{t}} = \bar{c}\,(1-\bar{b}).$$

*La concentration est donnée en entrée: $\bar{c}(\bar{x}=0,\bar{y}) = 1$,

* sur le réacteur ($0<\bar{x}<1$) le flux est donné par la relation mixte:

$$\frac{\partial}{\partial \bar{y}}\bar{c}(\bar{x},\bar{y}=0,\tilde{t}) = Da\ \bar{c}(\bar{x},\bar{y}=0,\tilde{t})\,(1-\bar{b}(\bar{x},\tilde{t})),$$

* sur les parois non réactives (donc en ($\bar{x},\bar{y}=1$), et en ($\bar{x}>1,\bar{y}=0$): $\frac{\partial}{\partial \bar{y}}\bar{c}(\bar{x},\bar{y},\tilde{t}) = 0$

* Le piège: il n'y pas de condition de sortie pour le système posé qui est parabolique en espace. Si on avait gardé le terme de dérivée seconde longitudinale, on aurait du mettre une condition de sortie; par exemple: $\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = 0$.

* conditions initiales en temps: $\bar{b}(\bar{x},\tilde{t}=0)=0$

* il n'y pas de condition initiale pour $\bar{c}$ à l'échelle de temps choisie.

3.1 $\bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c} = 0$ si Pe>>1, on a alors un problème à la paroi:

$\bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = 0$ donne que $\bar{c} = 1$ qui reste solution le long des lignes de courant SAUF sur la paroi en 0 où la pente est aussi infinie Da>>1. On doit donc introduire une couche limite de concentration.

Pour garder le maximum de termes, on choisit par PMD $\varepsilon = Re^{-1/3}$. D'où (*c.f.* PCn°2):

$$\tilde{y}\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\tilde{c} = \frac{1}{Pe}\left(\frac{\partial^2}{\partial \tilde{y}^2}\tilde{c}\right)$$

Le flux nous donne $\frac{\partial}{\partial \tilde{y}}\tilde{c} = Da\,\varepsilon$, donc la condition de flux ne dégénère pas si $Da=O((Pe)^{1/3})$

Pour la suite on prend: $Da=(Pe)^{1/3}$

Conditions aux limites, $\tilde{c}=0$ pour ; $\bar{x}<0$ et $\frac{\partial}{\partial \tilde{y}}\tilde{c}=1$ pour $\bar{x}>0$. Condition de raccord (condition limite) $\bar{c}(\bar{x},\bar{y}\to 0) = \tilde{c}(\bar{x},\tilde{y}\to\infty)=1$. Il est en fait ici très judicieux de poser:

$\tilde{c}(\bar{x},\tilde{y}) = 1 + \tilde{g}$ avec $\frac{\partial}{\partial \tilde{y}}\tilde{g}=1$ et $\tilde{g}(\bar{x},\tilde{y}\to\infty)=0$.

Solution semblable: on cherche par dilatation des variables à rendre l'équation différentielle invariante par ces dilatations:

$$\bar{x}=\hat{x}x^*,\ \tilde{y}=\hat{y}y^*,\ \tilde{g}=\hat{g}g^*.$$

donc $y^{*3}=x^*$ et $g^*=y^*$. La solution est une fonction implicite

$$F(\bar{x},\tilde{y},\tilde{g})=0$$

par l'invariance; $F(\hat{x}x^*,\hat{y}y^*,\hat{g}g^*)=0.$ ou $F(\hat{x}y^{*3},\hat{y}y^*,\ \hat{g}y^*)=0.$

ce que l'on peut reformuler en faisant disparaître y^* du maximum d'arguments:

$$F_2(\hat{x}y^{*3},\hat{y}\hat{x}^{-1/3},\hat{g}\hat{x}^{-1/3})=0.$$

Ceci étant vrai pour tout y^*, cet argument n'intervient pas, la solution est donc de la forme:

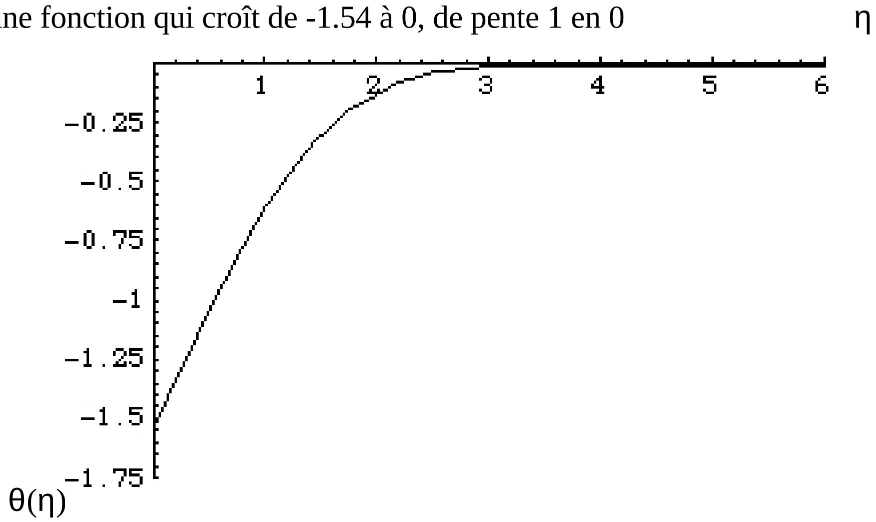
$$\hat{g} = \hat{x}^{1/3}\theta(\eta) \text{ avec } \eta=\hat{y}\hat{x}^{-1/3}.$$

$$\eta\hat{x}^{1/3}\ \theta'\ (-1/3)\ \eta/\hat{x} + \eta\ \hat{x}^{-2/3}\ \theta/3 = \theta''\ \hat{x}^{-2/3}, \text{ soit:}$$

$$(-\eta^2/3)\theta' + (\eta/3)\theta = \theta'' \quad \theta'(0)=1 \quad \theta(\infty)=0.$$

La vraie solution est donc $\tilde{c}=1+\bar{x}^{1/3}\ \theta(\tilde{y}\ \bar{x}^{-1/3})$

On a pour θ une fonction qui croît de -1.54 à 0, de pente 1 en 0




```
 sT1 = NDSolve[{
        T1''[y] + y^2  T1'[y]/3 - y  T1[y]/3 == 0,
        T1[0] == -1.54,
        T1'[0] == 1}, T1[y], {y, 0, 7}];
Plot[Evaluate[T1[y] //. sT1[[1]]], {y, 0, 6},
  PlotRange -> {{0, 6}, {-1.75, 0.}}]
```

La concentration à la paroi est donc: $\tilde{c}(\bar{x},\tilde{y}=0) = 1 - 1.54\ \bar{x}^{1/3}$, ou si on veut:

$$c(x,0)=c_0\ (1 - 1.54\ (x/L)^{1/3}).$$

La solution est valable tant que c>0. On remarque que si on n'avait pas posé Da $Pe^{-1/3}=1$, on aurait (*a priori* $DaPe^{-1/3}$ n'a absolument aucune raison de valoir 1):

$$c(x,0)=c_0\ (1 - 1.54\ (DaPe^{-1/3})\ (x/L)^{1/3})$$

4.1 On peut dire simplement que puisque l'on a montré que l'ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche limite de concentration est $HPe^{-1/3}$, alors

$D\frac{\partial}{\partial y}c(x,0,t)$ a pour ordre de grandeur $(D/H)\ Pe^{1/3}\ c_0$, le facteur h est à peu près:

$$h = (D/H)\ Pe^{1/3}.$$

Plus finement, on a vu dans la question précédente que $\tilde{c} = 1 - 1.54\ \bar{x}^{1/3}$ à la paroi

la moyenne le long du réacteur de $(c-c_0)/c_0$ est $- 1.54 \int_0^1 \bar{x}^{1/3}\ d\bar{x} = 1.54*\ 3/4=1.15$

$D\frac{\partial}{\partial y}c(x,0,t) = (D/H)\, Pe^{1/3}\, (1)\, c_0$, le 1 vient de la pente égale à 1.
donc comme 1/1.15=0.87, le facteur d'échange est en fait:

$$h = 0.87\, (D/H)\, Pe^{1/3}$$

On écrit:

$$0.87\, (D/H)\, Pe^{1/3}\, (C(t)-c_0) = -(k\, (d_0-B(t))\, C(t))$$

que l'on adimensionne:

$$(\bar{C}(\tilde{t})-1) = -\varepsilon_b\, (1-\bar{B}(\tilde{t}))\, \bar{C}(\tilde{t}) \quad \text{avec} \quad \varepsilon_b=1.15\, (Da\, Pe^{-1/3}) \ll 1$$

$$(\bar{C}(\tilde{t})-1) = -\varepsilon_b\, (1-\bar{B}(\tilde{t}))\, (1 + O(\varepsilon_b)) = \varepsilon_b\, (\bar{B}(\tilde{t})-1) + O(\varepsilon_b^2)$$

On suppose que:

$$\bar{B}(\tilde{t}) = \bar{B}_0(\tilde{t}) + \varepsilon_b \bar{B}_1(\tilde{t}) + \ldots \text{ donc } \quad \frac{\partial \bar{B}_0}{\partial \tilde{t}} = (1-\bar{B}_0) \quad \text{et} \quad \frac{\partial \bar{B}_1}{\partial \tilde{t}} = -\bar{B}_1 - (1-\bar{B}_0)^2$$

donc $\bar{B}_0 = 1 - \exp(-\tilde{t})$ et $\bar{B}_1 = \exp(-2\tilde{t}) - \exp(-\tilde{t})$,
l'expression finale utile de B(t) la concentration moyenne formée est:

$$B(t) = d_0((1 - \exp(-kc_0\, t)) + 1.15\, (Da\, Pe^{-1/3})\, (\exp(-2\, kc_0\, t) - \exp(-kc_0\, t)) + \ldots)$$

Note,
Une des difficultés est ici l'ambiguïté sur le choix du Péclet,

i) En adimensionnant la concentration avec c_0 (donnée initiale) $\bar{y}=y/H$, $\bar{x}=x/(L)$, $\bar{t}=t/(L/U_0)$:

$$\frac{\partial}{\partial \bar{t}}\bar{c} + \bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c}, \quad Pe=U_0H^2/(DL)$$

à résoudre pour $0< \bar{x} <1$.

ii) On aurait aussi pu choisir comme dans la PC 2 $\bar{y}=y/H$, $\bar{x}=x/(H)$, $\bar{t}=t/(H/U_0)$:

$$\frac{\partial}{\partial \bar{t}}\bar{c} + \bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{1}{Pe}\frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c}, \quad Pe=U_0H/(D)$$

à résoudre pour $0< \bar{x} <L/H$.

iii) Enfin on peut aussi choisir $\bar{y}=y/H$, $\bar{x}=x/(H^2U_0/D)$, $\bar{t}=t/(H^2/D)$:

$$\frac{\partial}{\partial \bar{t}}\bar{c} + \bar{y}(1-\bar{y})\frac{\partial}{\partial \bar{x}}\bar{c} = \frac{\partial^2}{\partial \bar{y}^2}\bar{c},$$

à résoudre pour $0< \bar{x} <L/(H^2U_0/D)$.

ii) et iii) sont en fait discutés en PC et en cours, il s'agit du point de vue de l'équation "elle même", en effet dans i) on introduit une longueur qui est indépendante des échelles naturelles de l'équation.