Écoulements microfluidiques pilotés sans contact par une onde laser

Matthieu Robert de Saint Vincent

▶ **To cite this version:**

Matthieu Robert de Saint Vincent. Écoulements microfluidiques pilotés sans contact par une onde laser. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2010. Français. NNT : . tel-00532632

HAL Id: tel-00532632

https://theses.hal.science/tel-00532632

Submitted on 4 Nov 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 4072

THÈSE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

PAR **Matthieu ROBERT DE SAINT VINCENT**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : LASERS, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

Écoulements microfluidiques pilotés sans contact par une onde laser

---

Soutenue le 8 octobre 2010

Après avis de :

M^me^ Isabelle CANTAT	Professeur à l'université Rennes 1 Institut de physique de Rennes	**Rapporteur**
M. Philippe MARMOTTANT	Chargé de recherches au CNRS Laboratoire de spectrométrie physique, Grenoble	**Rapporteur**

Devant la commission d'examen formée de :

M. Laurent LIMAT	Directeur de recherches au CNRS	**Président**
M^me^ Isabelle CANTAT	Professeur à l'université Rennes 1	**Rapporteur**
M. Philippe MARMOTTANT	Chargé de recherches au CNRS	**Rapporteur**
M. Hamid KELLAY	Professeur à l'université Bordeaux 1	**Examinateur**
M. Jean-Pierre DELVILLE	Directeur de recherches au CNRS	**Directeur de thèse**
M. Régis WUNENBURGER	Maître de conférences à l'université Bordeaux 1	**Co-directeur de thèse**
M^me^ Annie COLIN	Professeur à l'université Bordeaux 1	**Invitée**

– 2010 –

Remerciements

Le travail présenté ici est le fruit de quatre années intenses passées au sein du centre de physique moléculaire optique et hertzienne (CPMOH). Je voudrais donc témoigner toute ma gratitude à l'égard de celles et ceux qui m'ont entouré et soutenu durant cette période.

Je remercie tout d'abord Éric Freysz, directeur du CPMOH, de m'y avoir accueilli.

Je souhaite remercier ensuite Isabelle Cantat et Philippe Marmottant d'avoir accepté la lourde tâche de rapporter ce manuscrit. Merci également à Laurent Limat, Hamid Kellay et Annie Colin de m'avoir fait l'honneur de leur présence au sein du jury.

Jean-Pierre Delville a su, durant ces quatre années, me guider et encadrer cette thèse de façon optimale. Son enthousiasme permanent a pu compenser mon « légendaire » pessimisme, en particulier face à une reproductibilité des résultats parfois discutable. Il a su constamment, par son exigence, me faire progresser, tout en m'accordant une liberté croissante dans la réalisation et l'interprétation des manips. Pour tout cela, et pour la grande disponibilité dont il a fait preuve à mon égard, en dépit d'un emploi du temps surchargé, je lui adresse mes plus sincères remerciements.

J'associe à ces remerciements Régis Wunenburger, en tant que co-directeur de thèse, ainsi que les autres membres permanents de l'équipe, Étienne Brasselet et Hamza Chraïbi.

Les différentes thématiques abordées sur le plan expérimental m'ont amené à interagir avec de nombreux membres du laboratoire. En particulier, le dispositif de caractérisation d'écoulements est issu d'une collaboration particulièrement fructueuse avec Joël Plantard et Sébastien Cassagnère. Merci à tous les deux pour votre constante bonne humeur même lorsque la forme du signal nous laissait perplexe (« d'où sortent ces foutues oreilles de Mickey ? »). Merci aussi à Gedas Jonusauskas pour son aide précieuse dans l'interprétation des mesures d'absorption des colorants, et pour le calcul du rendement quantique de fluorescence. La partie sur la brisure de jet a largement bénéficié de l'éclairage d'Hamid Kellay, et de ses idées de manips, mises en œuvre à quelques semaines de la soutenance. Yacine Amarouchène a également participé à cette réflexion. Enfin, je voudrais remercier Jean-Baptiste Salmon de m'avoir initié à la microfabrication.

Le bon déroulement de cette thèse doit beaucoup à tous ceux qui garantissent des conditions matérielles optimales. Je remercie à ce titre les informaticiens Richard Perrier et Hassan Akrach, les électroniciens Philippe Maire et William Benharbone, les mécaniciens Touati Douar, Eddie Maillard et Sandra Bosio, et Jacky Geneste sans qui bien des choses au labo ne fonctionneraient pas. Merci à Laurence Quémard, Laurette Geneste, Suzanne Bessus, Annie Commarmond et Isabelle Guillaume de m'avoir dégagé de toute tracasserie administrative, et à Bernadette Bergeret pour son aide dans la recherche de papiers introuvables en ligne.

Depuis mon arrivée, j'ai eu le plaisir de côtoyer plusieurs générations de thésards et autres post-docs. En premier lieu, je voudrais saluer tous ceux qui ont cohabité avec moi dans notre bureau exigu : Bruno (merci pour ton aide en Matlab, nos échanges de mails débiles et... ta

chaise), Moustafa, Nicolas (fournisseur officiel de surnoms, fournisseur officieux de combines diverses, auteur de formules d'anthologie), Julien (chauffeur et cuisinier hors pair ! Merci d'avoir souvent partagé ces deux grandes qualités, et aussi beaucoup d'autres choses), Julien (papoteur pipeauteur... Bonne chance pour ta nouvelle carrière de l'autre côté de l'estrade...). Un peu plus loin, mais pas beaucoup plus, le Blond (« M'sieur dames... ») et Herr von Gert (t'as pas bientôt fini de taper sur les murs ?) n'ont pas manqué de se joindre à nous, confondant souvent les portes 118 et 120. Comme ça m'est arrivé aussi de temps en temps, je ne vous en veux pas...

Merci aussi à tous ceux avec qui j'ai pu passer d'agréables moments dans les couloirs du labo, autour d'un café ou d'une bonne table : Matthieu, Nicolas, Fanny, Stéphane, David, Yann, Pierre, Cécile, Christine, Daniel, Émilie, François, Gilles, Hélène, Grégoire, Silvia, Laura, Geoffrey, Benjamin... la liste n'est pas close. Bonne route à tous !

Je tiens enfin à remercier Philippe et Alexandre, qui ont, dans le cadre de leurs stages respectifs, souffert tour à tour dans l'interprétation des premières manips d'aiguillage et de brisure de jets.

Durant ces quatre années, j'ai eu l'opportunité de découvrir les joies de l'enseignement, dans le cadre de vacations puis d'un service d'ATER. De cette expérience, je retire une profonde satisfaction, en dépit du gros investissement que cela représente. Je voudrais donc remercier tous ceux qui m'ont accompagné dans cette aventure, en particulier Mona Tréguer, Jérôme Degert (encore lui !), Christine Grauby et Denise Mondieig. Merci à Pol Bégasse et Pierre Bordenave pour leur gentillesse et leur disponibilité lors de la préparation des TP. Je tiens enfin à remercier l'ensemble des étudiants que j'ai « eus » en TP ou en TD.

Pour finir, je voudrais adresser toute ma reconnaissance à ma famille, qui m'a permis d'arriver jusqu'ici et m'a accompagné dans les joies comme dans les difficultés. Merci particulièrement à Violaine pour son soutien quotidien, et pour bien davantage encore...

À mon père.

Table des matières

Introduction **1**

1 Écoulements diphasiques en environnement confiné **3**
1.1 Formation de gouttes en microcanal . . . 3
1.1.1 Hydrodynamique à petite échelle . . . 3
1.1.2 Géométries à écoulement parallèle . . . 5
1.1.3 Géométries à écoulement croisé . . . 6
1.1.4 Géométries à focalisation d'écoulement . . . 9
1.2 Manipulation d'écoulements microfluidiques . . . 11
1.2.1 Écoulement de base . . . 11
1.2.2 Écoulements contrôlés par voie hydrodynamique . . . 12
1.2.3 Écoulements contrôlés par une interaction fluide-structure . . . 13
1.2.4 Écoulements induits par des effets interfaciaux . . . 14
1.2.5 Écoulements contrôlés par des effets thermiques . . . 18
1.2.6 Écoulements contrôlés par des effets électriques . . . 18
1.2.7 Micromanipulations optiques . . . 20

2 Effet Marangoni **25**
2.1 Migration de gouttes et de bulles . . . 25
2.1.1 Cas des fluides purs en milieu infini . . . 25
2.1.2 Influence de la présence de tensioactifs . . . 26
2.1.3 Influence du confinement . . . 29
2.2 Déformations d'interfaces . . . 31
2.2.1 Déformation thermocapillaire . . . 31
2.2.2 Déformation thermogravitaire . . . 33

3 Techniques expérimentales **35**
3.1 Fluides utilisés . . . 35
3.1.1 Propriétés interfaciales . . . 35
3.1.2 Propriétés optiques . . . 37
3.2 Montage optique . . . 38
3.2.1 Col du faisceau . . . 38
3.2.2 Imagerie . . . 40
3.3 Circuit microfluidique . . . 40

4 Blocage thermocapillaire d'écoulements microfluidiques lents **43**
4.1 Observations qualitatives . . . 43
4.1.1 Écoulement de base . . . 43
4.1.2 En présence de laser . . . 44
4.2 Vitesse thermocapillaire . . . 47
4.2.1 Mesure de vitesse . . . 47
4.2.2 Gradient de température . . . 49

4.2.3 Dépendance géométrique . . . 56
4.3 Blocage thermocapillaire . . . 58
4.3.1 Bilan des forces . . . 58
4.3.2 Évolution temporelle des forces . . . 61
4.3.3 Temps de blocage . . . 64
4.3.4 Taille des gouttes obtenues . . . 67
4.3.5 Bilan . . . 68

5 Déviation de gouttes 71
5.1 Géométrie expérimentale . . . 71
5.2 Cinématique des gouttes . . . 72
5.2.1 Trajectoire . . . 72
5.2.2 Vitesse thermocapillaire . . . 76
5.3 Efficacité d'aiguillage . . . 77
5.4 Applications . . . 78
5.4.1 Séparation de gouttes . . . 78
5.4.2 Régulation du trafic . . . 79
5.5 Effet d'aiguillage inversé . . . 79

6 Caractérisation d'écoulements diphasiques 83
6.1 État de l'art . . . 83
6.2 Principe de la mesure . . . 84
6.2.1 Dispositif expérimental . . . 84
6.2.2 Interprétation du signal . . . 86
6.3 Validation des résultats . . . 89
6.3.1 Étude en débits . . . 89
6.3.2 Étude en contraste d'indice . . . 89
6.4 Applications . . . 94
6.4.1 Caractérisation d'écoulements aux temps longs . . . 94
6.4.2 Réponse de l'écoulement à un changement de régime . . . 96

7 Brisure d'un jet laminaire forcée par laser 101
7.1 Déstabilisation et rupture de cylindres liquides . . . 101
7.1.1 Origine de l'instabilité . . . 102
7.1.2 Développement spatial de l'instabilité . . . 103
7.1.3 Effet du confinement . . . 104
7.1.4 Vers la rupture : dynamique non linéaire . . . 106
7.1.5 Déstabilisation forcée . . . 109
7.2 Du pincement thermocapillaire à la rupture . . . 109
7.2.1 Déformation thermocapillaire : pincement ou gonflement ? . . . 109
7.2.2 Pincement thermocapillaire d'un jet . . . 111
7.2.3 Dynamique thermique . . . 116
7.2.4 Dynamique proche de la rupture . . . 120
7.2.5 Bilan . . . 128
7.3 Génération de gouttes . . . 129
7.3.1 Du régime de jet au régime de goutte à goutte . . . 129
7.3.2 Caractérisation des gouttes . . . 131
7.3.3 Excitation modulée : un échantillonneur optofluidique . . . 134

Conclusion 139

A Fabrication de microcanaux par lithographie « souple » 143
A.1 Photolithographie 143
A.2 Impression 144

B Détermination du rendement quantique de fluorescence 145

C Conditions aux limites thermiques 147
C.1 Couche semi-infinie absorbant en surface 147
C.2 Film isolant séparant deux couches conductrices 149
C.3 Fuites thermiques à travers la paroi de verre 150

D Propriétés optiques d'une solution de colorant alimentaire E122 153

Bibliographie 155

Introduction

Les besoins d'outils d'analyse en biologie et en chimie à partir des années 1990 et, plus récemment, l'émergence de thématiques de recherche autour des nanomatériaux ont conduit au développement de nouveaux procédés d'analyse et de synthèse. Ces procédés s'inscrivent dans une démarche de miniaturisation de circuits fluidiques similaire à celle qu'ont connu les circuits électroniques au cours de la seconde moitié du XX^{e} siècle [1]. La microfluidique, qui se définit comme l'ensemble des outils et des concepts associés à l'étude, à la manipulation et à l'utilisation de fluides à une échelle caractéristique comprise entre quelques µm et quelques centaines de µm, est ainsi née de cette démarche. Au-delà des possibilités nouvelles offertes par le développement de technologies de microfabrication adaptées de la microélectronique et des MEMS *(MicroElectroMechanical Systems)*, et qui l'ont rendue techniquement réalisable, la réduction d'échelle s'avère particulièrement pertinente dans ce contexte.

Une première raison de cette pertinence repose sur la physique des systèmes de dimension micrométrique. À petite échelle, le rapport surface à volume particulièrement élevé favorise les transferts de chaleur et de matière. Par ailleurs, les écoulements sont généralement laminaires, ce qui facilite notamment le contrôle des procédés de séparation [2,3]. Enfin, l'importance des effets visqueux renforce l'influence des conditions aux limites, permettant d'envisager la génération d'écoulements à longue portée depuis les parois [4].

Une deuxième raison est technologique. La miniaturisation permet le multiplexage de réactions chimiques, dans le but de réaliser un « laboratoire sur puce » (en anglais *lab on a chip,* aussi appelé µTAS (*Micro-scale Total Analysis System*)). Ce concept repose sur l'intégration, au sein d'un dispositif compact, de toutes les étapes de la réaction, de la mise en contact des réactifs à l'identification des produits [5–8].

Enfin, une troisième raison est d'ordre économique. La réduction d'échelle autorise en effet la manipulation de petits volumes — typiquement entre le femtolitre et le nanolitre — de réactifs, réduisant les temps de réaction et les coûts.

Les écoulements diphasiques sont constitués de deux fluides immiscibles. Le cas d'un objet de taille finie — goutte ou bulle — immergé dans un autre fluide, alors qualifié de porteur, en est un exemple simple. Un tel objet constitue un microréacteur idéal, qui peut être transporté au sein de réseaux complexes de microcanaux par l'écoulement du fluide porteur. De plus, le caractère non miscible empêche toute contamination croisée par l'intermédiaire de ce fluide. La microfluidique diphasique s'avère donc un cadre particulièrement approprié aux applications liées aux analyses et aux synthèses chimiques [9,10], sous réserve de maîtriser les caractéristiques individuelles des microréacteurs.

Les techniques de génération des gouttes ou des bulles sont basées sur un contrôle de l'équilibre des forces s'exerçant sur l'interface, principalement par le biais de la géométrie et des caractéristiques d'écoulement [11]. Elles permettent d'obtenir des microréacteurs de taille homogène, avec des cadences d'émission bien contrôlées. Toutefois, cette approche est conditionnée de manière intrinsèque par la géométrie figée du microcanal. Elle limite ainsi les possibilités de modification ultérieure, en temps réel et localisée sur un objet unique, des caractéristiques de l'objet. Par exemple, des opérations telles que la division, l'aiguillage ou la fusion de gouttes, ou encore le mélange au sein de ces gouttes, ne peuvent être réalisées que de façon passive, avec

une géométrie adaptée, et ne sont donc pas sélectives à l'échelle d'un objet individuel.

Plusieurs approches, mettant en œuvre un champ externe, ont été proposées dans ce but. Néanmoins, ces approches impliquent généralement une microfabrication dédiée. Elles présentent donc un caractère figé, à l'instar des approches purement géométriques, qui limite leur polyvalence et leur degré de reconfigurabilité.

À cet égard, une approche optique, intrinsèquement sans contact, s'avère donc intéressante. Cependant, l'ordre de grandeur des forces exercées par la lumière sur des objets diélectriques micrométriques est en général très insuffisant pour envisager la manipulation directe d'écoulements diphasiques en microcanal. On peut en revanche utiliser un faisceau laser pour engendrer des effets mécaniques de façon indirecte, notamment par chauffage de l'interface.

L'objet de cette thèse consiste à utiliser un tel effet, engendré par le chauffage par laser d'une interface entre deux liquides immiscibles, dans le but de réaliser des composants fluidiques élémentaires.

Ce mémoire est composé de sept chapitres. Les deux premiers introduisent le contexte scientifique dans lequel s'inscrit ce travail de thèse. Le chapitre 1 décrit ainsi les principales méthodes développées pour engendrer et manipuler des microécoulements diphasiques. Les différentes approches faisant intervenir un champ externe y sont discutées. La modulation spatiale de la tension interfaciale constitue le mécanisme de base des effets mécaniques utilisés au cours de cette thèse. Ces effets, regroupés sous le terme « effet Marangoni », sont présentés au chapitre 2.

Le chapitre 3 définit les bases expérimentales sur lesquelles repose cette étude. Les propriétés des fluides utilisés et les méthodes expérimentales mises en œuvre y sont décrites. Les résultats obtenus sont regroupés dans les quatre chapitres suivants.

Au chapitre 4, nous montrons que l'effet Marangoni peut interrompre l'écoulement de gouttes lorsque leur vitesse est suffisamment petite. Cet effet est caractérisé, et appliqué à la démonstration de principe d'une vanne optofluidique. Lorsque la vitesse de l'écoulement est plus importante, l'effet n'est plus suffisant pour bloquer les gouttes, mais permet tout de même de les dévier. Cette déviation est caractérisée, et appliquée à la réalisation d'un aiguillage de gouttes, au chapitre 5.

Le dernier chapitre implique la détection et la mesure des caractéristiques de gouttes à des cadences d'émission élevées et sur des temps longs. Cette caractérisation fait appel à un dispositif de mesure, développé dans le cadre de cette thèse, qui fait l'objet du chapitre 6. Enfin, au chapitre 7, l'effet Marangoni est utilisé pour forcer la brisure de jets microfluidiques, dans le but de réaliser un échantillonneur optofluidique à haut débit.

Chapitre 1

Écoulements diphasiques en environnement confiné

La problématique initiale de la microfluidique diphasique, dans le cadre d'une application à la chimie, est la formation de gouttes de taille submillimétrique d'une phase dans une autre. Cette problématique s'apparente donc étroitement au cadre général des émulsions [12]. On désignera ainsi par phase dispersée et phase continue, respectivement, les gouttes et le fluide porteur dans lequel elles s'écoulent. En milieu confiné, le caractère continu ou dispersé de chaque phase est imposé par les conditions de mouillage aux parois : la phase continue est toujours la plus mouillante [13]. Pour cette raison, les phases dispersée et continue sont parfois désignées respectivement comme interne et externe.

D'autre part, la perspective de l'utilisation de gouttelettes comme microréacteurs impose d'en contrôler le transport, l'éventuelle division, la fusion et le mélange avec d'autres microréacteurs. Ce chapitre présente différentes approches développées dans la littérature pour répondre à ces deux problématiques.

1.1 Formation de gouttes en microcanal

La formation de gouttes au sein d'une phase continue est, d'une façon générale, pilotée par l'équilibre entre les contraintes locales sur l'interface. Cet équilibre peut être contrôlé par l'intermédiaire de la géométrie du microcanal. Les méthodes actuellement les plus significatives font l'objet d'une revue thématique [11] dont cette section s'inspire largement. D'autres techniques de génération de gouttes, faisant appel notamment à des champs électriques, ne seront pas développées ici.

Après une présentation du cadre théorique associé aux problèmes de microfluidique, nous considérons les trois géométries principales représentées sur la figure 1.1. Pour des canaux de section rectangulaire, couramment employés en microfluidique, les paramètres géométriques pertinents sont la largeur w et la hauteur h du microcanal. Ces grandeurs sont indicées c ou d si elles sont spécifiques à la phase continue ou dispersée, respectivement.

1.1.1 Hydrodynamique à petite échelle

Équations constitutives

L'équation générale de la dynamique des milieux continus (équation de Navier-Stokes) relie le champ de vitesse $\mathbf{u}$ au champ de pression p, en présence d'une force externe par unité de volume $\mathbf{f}$:

$$\rho\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\nabla}\right)\mathbf{u} = -\boldsymbol{\nabla}p + \eta\nabla^2\mathbf{u} + \mathbf{f} \tag{1.1}$$

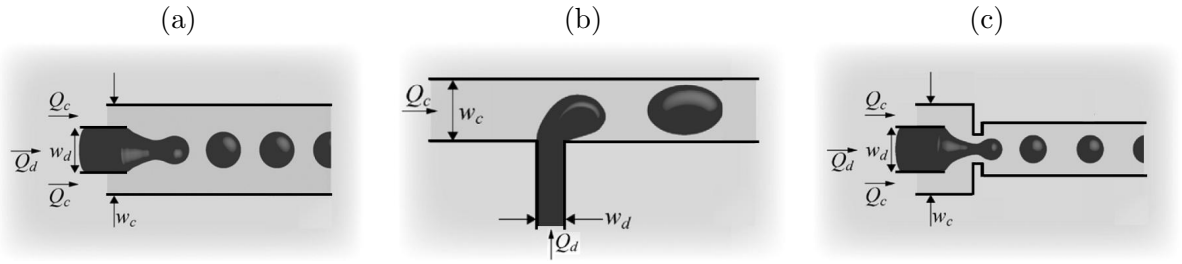

FIG. 1.1 – *Principales géométries considérées pour la formation de gouttes (phase dispersée) au sein d'une phase continue en microcanal. On distingue les géométries* (a) *à écoulement parallèle,* (b) *à écoulement croisé (jonction en T),* (c) *à écoulement focalisé (au moyen d'une striction). Q_c et Q_d représentent les débits respectifs des phases continue et dispersée. Adapté de* [11].

avec ρ la masse volumique et η la viscosité dynamique du fluide, et ∇^2 l'opérateur laplacien. Les termes $\rho\,(\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\nabla})\,\mathbf{u}$ et $\eta\nabla^2\mathbf{u}$ représentent respectivement l'inertie du fluide, et la force visqueuse par unité de volume.

Par ailleurs, la conservation de la matière

$$\frac{\partial\rho}{\partial t}+\boldsymbol{\nabla}\cdot(\rho\mathbf{u})=0 \tag{1.2}$$

s'écrit, dans le cas — généralement considéré en microfluidique — des fluides incompressibles,

$$\boldsymbol{\nabla}\cdot\mathbf{u}=0. \tag{1.3}$$

Forces en présence

Les forces impliquées dans les écoulements peuvent être liées à la dissipation visqueuse, à la capillarité, à un gradient de pression ou à l'inertie du fluide. Considérons les forces qui s'appliquent à l'interface entre la phase continue et la phase dispersée.

La force capillaire s'appliquant sur le contour délimitant une surface S de courbure moyenne κ s'écrit

$$F_{cap}\sim\sigma\kappa S \tag{1.4}$$

avec σ la tension interfaciale. Pour une goutte sphérique de rayon R_g, $\kappa=\frac{1}{R_g}$; si la goutte est confinée dans un capillaire cylindrique de rayon interne R, $\kappa=\frac{2}{R}$. Dans un canal de section rectangulaire on distingue une courbure dans le sens de la profondeur, $\kappa_z\sim\frac{2}{h}$, et une courbure dans le plan, $\kappa_r\sim\frac{2}{w}$, la courbure totale étant la somme des deux.

La force de cisaillement visqueux qui s'exerce sur la surface S s'exprime

$$F_{visq}\sim\eta\dot{\varepsilon}S \tag{1.5}$$

où $\dot{\varepsilon}\sim\frac{U}{\ell}$ est le taux de cisaillement, qui dépend de la vitesse U du liquide et de l'échelle caractéristique des gradients de vitesse, ℓ.

Le rapport de ces deux forces définit un nombre sans dimension, le nombre capillaire Ca :

$$\mathrm{Ca}=\frac{F_{visq}}{F_{cap}}=\frac{\eta\dot{\varepsilon}S}{\sigma\kappa S}\sim\frac{\eta U}{\sigma}\frac{\kappa^{-1}}{\ell}. \tag{1.6}$$

En microfluidique, l'ordre de grandeur de ce nombre est typiquement compris entre 10^{-3} et 10, ce qui signifie que les forces capillaires peuvent être alternativement dominantes, comparables ou négligeables devant les forces visqueuses. Dans le contexte de la formation de gouttes en environnement confiné, ce nombre traduit notamment l'influence du confinement. Lorsque la force capillaire est grande (donc à petit nombre capillaire), elle s'oppose fortement au détachement

de la goutte, qui peut alors occuper tout l'espace disponible.

En outre, l'inertie d'un volume V de fluide peut s'écrire sous forme d'une force :

$$F_{inert} = \rho V \left(\mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\nabla}\right) \mathbf{u}. \tag{1.7}$$

L'importance de l'inertie relativement aux autres forces en présence est donnée par deux nombres sans dimension. Le nombre de Reynolds Re compare l'inertie aux forces visqueuses,

$$\mathrm{Re} = \frac{F_{inert}}{F_{visq}} = \frac{\rho V \left(\mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\nabla}\right) \mathbf{u}}{\eta V \nabla^2 \mathbf{u}} \sim \frac{\rho U d_H}{\eta}, \tag{1.8}$$

avec $d_H = \frac{2}{\kappa}$ le diamètre hydraulique du volume de fluide considéré. En microfluidique, on a généralement $\mathrm{Re} \ll 1$. Le nombre de Weber We compare l'inertie aux forces capillaires,

$$\mathrm{We} = \frac{F_{inert}}{F_{cap}} = \mathrm{Re}\,\mathrm{Ca}, \tag{1.9}$$

il est généralement petit en microfluidique. L'inertie est donc généralement négligeable devant les forces mises en jeu dans le cadre des écoulements à petite échelle. L'équation de Navier-Stokes (1.1) peut alors être simplifiée, conduisant à l'équation de Stokes :

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = -\boldsymbol{\nabla} p + \eta \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{f}. \tag{1.10}$$

Les équations (1.3) et (1.10) constituent ainsi le cadre théorique dans lequel la plupart des problèmes de microfluidique peuvent être traités.

1.1.2 Géométries à écoulement parallèle

Un écoulement parallèle (ou *co-flow* en anglais) peut être obtenu en emboîtant deux capillaires de section ronde ou rectangulaire, comme représenté sur la figure 1.1 (a). Selon les débits respectifs de chaque phase, deux régimes sont observés [14]. À faible débit, les gouttes se forment au niveau de la buse (image du haut de la figure 1.2 (a)) : ce régime de goutte à goutte est appelé *dripping*. Lorsque les débits sont plus grands, la phase interne s'allonge et se brise à une plus grande distance de la buse (image du bas de la figure 1.2 (a)). Ce régime de jet est appelé *jetting* lorsque cette distance dépasse 20 fois le rayon interne du capillaire de la phase dispersée [15]. Nous ne considérerons que le régime de goutte à goutte dans cette section.

Le régime de *dripping* permet d'obtenir des gouttes très monodisperses (polydispersité 3 %, figure 1.2 (b)), dont la taille peut être contrôlée entre 2 et 200 µm [16]. La taille des gouttes augmente lorsque la vitesse de la phase continue diminue, ou lorsque la tension interfaciale est réduite. La rupture de l'interface liquide semble donc pilotée par un équilibre entre la force capillaire, stabilisante, et le cisaillement visqueux dû à la phase continue, déstabilisant. Écrivant l'équilibre de ces forces sur une goutte en formation, Umbanhowar et coll. [16] obtiennent une relation prédisant le rayon R_g de la goutte :

$$\left(\frac{R_g}{R}\right)^3 - \left(1 + \frac{1}{3\mathrm{Ca}}\right)\left(\frac{R_g}{R}\right)^2 - \frac{U_d}{U_c}\frac{R_g}{R} + \frac{U_d}{U_c} = 0 \tag{1.11}$$

où R est le rayon interne du capillaire de la phase dispersée. Cette expression se réduit à

$$\frac{R_g}{R} \simeq 1 + \frac{1}{3\mathrm{Ca}} \tag{1.12}$$

lorsque le débit de la phase dispersée est petit devant celui de la phase continue. La taille des gouttes ne dépend alors plus du rapport des débits. Comme le signalent les auteurs, ce modèle ne tient pas compte de l'inertie, qui n'est pas totalement négligeable dans cette étude réalisée à des valeurs du nombre de Reynolds typiquement comprises entre 10^{-2} et 10^2. Il est néanmoins en bon accord avec les données expérimentales.

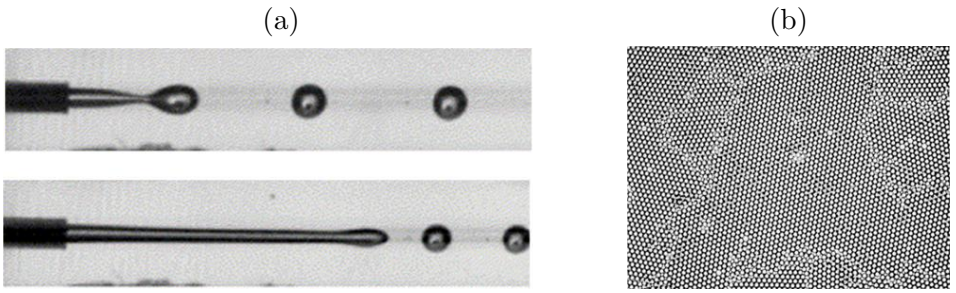

FIG. 1.2 – (a) *Régimes de* dripping *(haut) et de* jetting *(bas)* [14]. *La phase interne est une solution aqueuse, l'externe de l'huile de tournesol. Le diamètre interne du capillaire est* 0,1 mm. (b) *Gouttes d'eau dans de l'huile silicone obtenues à partir d'un capillaire de diamètre interne* 5 µm. *Diamètre des gouttes :* 10 µm. *Du fait de leur monodispersité, ces gouttes adoptent un ordre à grande distance en l'absence d'écoulement* [16]. *Ces gouttes ont été obtenues à partir de jets dont les vitesses sont typiquement* 0,4 $\mathrm{m \cdot s^{-1}}$.

1.1.3 Géométries à écoulement croisé

Dans une géométrie à écoulement croisé (ou *cross-flow*), ou jonction en T, le canal de la phase dispersée rejoint celui de la phase continue par un côté (figure 1.1 (b)). L'intégration d'une telle géométrie en microfluidique (figure 1.3) a été présentée pour la première fois par Thorsen et coll. [17] dans le groupe de Quake à Caltech. La formation de gouttes est observée lorsque les pressions imposées à chaque phase sont comparables. Par ailleurs, les auteurs observent que les gouttes formées s'organisent en aval de la jonction, formant des arrangements complexes qui dépendent des pressions imposées (figure 1.3 (c)).

Un modèle rudimentaire, basé sur l'équilibre des forces visqueuse et capillaire, est proposé pour caractériser les gouttes formées. La force visqueuse s'écrit, par unité de surface, $f_{visq} \sim \eta\dot{\varepsilon}$, avec $\dot{\varepsilon} \sim \frac{4U'_c}{w_c}$, U'_c étant la vitesse moyenne de la phase continue au sein de l'espace non occupé par la goutte. La goutte est vue comme sphérique, la force capillaire par unité de surface s'écrit alors $f_{cap} \sim \frac{\sigma}{R_g}$. L'équilibre des forces conduit ainsi à

$$R_g \sim \frac{U'_c}{\mathrm{Ca}\,\dot{\varepsilon}}. \tag{1.13}$$

La taille des gouttes ne dépend alors que de la largeur du canal et du nombre capillaire. À petit nombre capillaire, ce comportement tend vers celui prédit par Umbanhowar et coll. [16] pour un écoulement parallèle. Cependant, ce comportement surestime le rayon des gouttes (jusqu'à deux fois le rayon mesuré).

Par la suite, deux configurations expérimentales se sont singularisées. On distingue ainsi les géométries fortement ou faiblement confinées, selon que le ménisque de la goutte émergeante touche ou non la paroi opposée avant la rupture.

Géométries peu confinées

Dans cette configuration, la goutte émergeante n'obstrue pas notablement le canal de la phase continue. La rupture se produit à l'équilibre de la traînée visqueuse avec la force de tension interfaciale. Plusieurs modèles [18,19] ont été proposés, tenant compte des viscosités des deux phases. Husny et Cooper-White [18] obtiennent ainsi :

$$\left(\frac{R_g}{R_c}\right)^4 - 2\left(\frac{R_g}{R_c}\right)^3 + \frac{\psi}{2}\left(\frac{R_g}{R_c}\right)^2 + \left(\frac{w_d}{2R_c}\right)^2 \frac{1+\frac{\eta_c}{\eta_d}}{2\left(3+2\frac{\eta_c}{\eta_d}\right)\mathrm{Ca}} = 0 \tag{1.14}$$

avec $R_c = \frac{w_c h}{w_c + h}$ le rayon hydraulique du canal de la phase continue et ψ une fonction de Ca liée au rapport de la vitesse de la goutte à la vitesse moyenne de la phase continue ($0 < \psi < 2$).

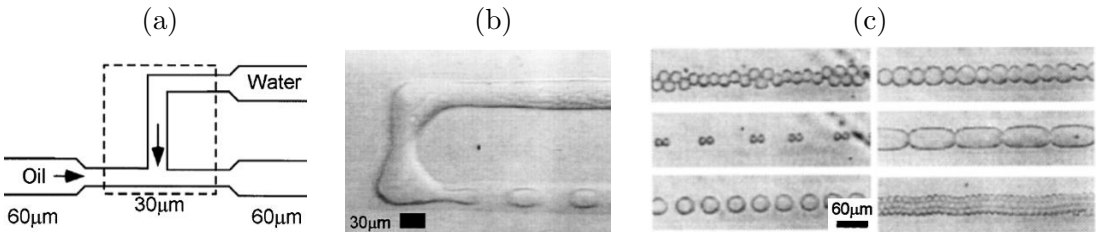

Fig. 1.3 – (a) *Schéma représentant la géométrie utilisée par Thorsen et coll.* [17] (b) *Gouttes d'eau formées à la jonction en T. La phase organique est constituée d'un alcane et d'un tensioactif. La zone représentée correspond au rectangle tireté sur le schéma* (a). (c) *Exemples d'arrangements formés par les gouttes dans la zone élargie du canal. Les bords du canal sont arrondis pour favoriser les arrangements complexes.*

Cette expression dépend de Ca, de la géométrie du canal et du rapport des viscosités. Le rayon des gouttes décroît avec Ca pour tendre vers $0{,}3R_c$ à grand nombre capillaire. En géométrie très faiblement confinée, les termes d'ordres 3 et 4 en $\frac{R_g}{R_c}$ deviennent petits devant le terme d'ordre 2. Le rayon de la goutte, qui s'écrit alors

$$R_g = \frac{w_d}{2}\sqrt{\frac{1+\frac{\eta_c}{\eta_d}}{3+2\frac{\eta_c}{\eta_d}}\frac{1}{\psi\,\mathrm{Ca}}}, \tag{1.15}$$

varie en $\mathrm{Ca}^{-\frac{1}{2}}$. Ce comportement a été récemment retrouvé expérimentalement à petit nombre de Reynolds par Meyer et Crocker [20].

Dans une autre étude, réalisée à plus grand nombre de Reynolds, Xu et coll. [19] considèrent l'équilibre des moments associés à la force capillaire, la poussée d'Archimède, la pression statique de la phase dispersée, la force visqueuse et l'inertie. La rupture reste essentiellement pilotée par la force de traînée.

Géométries fortement confinées

Cette situation est caractérisée par l'obstruction presque complète du canal de la phase continue, qui ne s'écoule qu'à travers un film d'épaisseur δ, comme représenté sur la figure 1.4. Cette obstruction induit une augmentation de la pression amont, qui exerce sur la goutte en formation la force F_{obs} [21]

$$F_{obs} \sim \frac{\eta_c Q_c w_c^2}{\delta^3}, \tag{1.16}$$

en plus de la force visqueuse

$$F_{visq} \sim \frac{\eta_c Q_c w_c}{\delta^2}. \tag{1.17}$$

Si ces deux forces agissent dans le sens d'une déformation de l'interface, la loi d'échelle de la force liée à la surpression lui est plus favorable que celle de la force visqueuse aux forts confinements ($\delta \ll w_c$). C'est donc cette force qui pilote la brisure lorsque le confinement est fort.

Garstecki et coll. [21, 22] proposent un mécanisme de formation de la goutte à petit nombre capillaire ($\mathrm{Ca} < 0{,}01$). La dynamique suit deux étapes : dans un premier temps, la goutte croît proportionnellement à Q_d, jusqu'à l'obstruction du canal de la phase continue, ensuite la force due à la surpression, proportionnelle à Q_c, déforme l'interface jusqu'à sa rupture. Ce scénario se traduit par la loi d'échelle pour la longueur L_g de la goutte :

$$\frac{L_g}{w_c} \simeq 1 + \alpha\frac{Q_d}{Q_c} \tag{1.18}$$

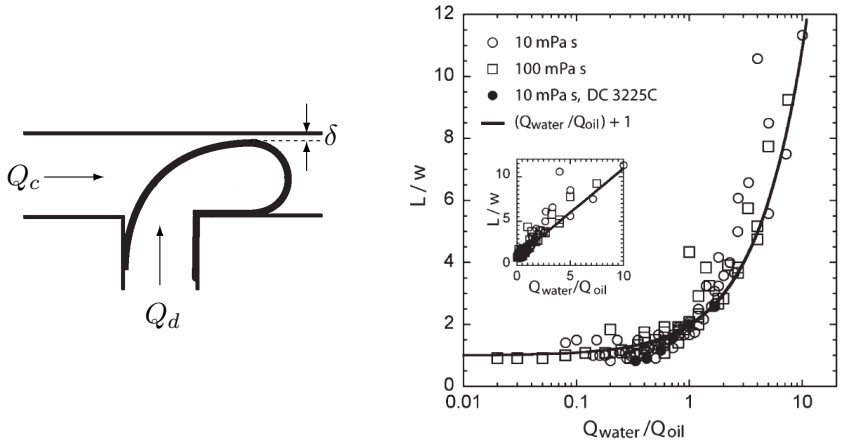

FIG. 1.4 – *Formation d'une goutte d'eau dans de l'huile silicone dans un microcanal à géométrie croisée en régime fortement confiné. Les longueurs de gouttes mesurées et prédites (avec $\alpha = 1$) sont tracées en fonction du rapport des débits en échelle logarithmique. La viscosité de la phase continue varie ; un tensioactif* (DC 3225C) *peut être ajouté dans cette phase pour faire varier la tension interfaciale. La taille des gouttes est indépendante de la viscosité de l'huile et de la tension interfaciale. Encart : la même courbe en échelle linéaire. Tiré de* [21].

avec α une constante de l'ordre de l'unité, qui dépend de la géométrie de la jonction mais pas du rapport des viscosités. La taille des gouttes ne dépend pas du nombre capillaire. Ce scénario a été validé expérimentalement (figure 1.4) et numériquement [22]. Les simulations numériques [22] prévoient, selon la valeur du nombre capillaire, l'existence de plusieurs régimes de formation des gouttes, représentés sur la figure 1.5. Le régime dominé par la surpression en amont, pour Ca $< 0{,}02$, est appelé *squeezing* (figure 1.5 (a)). Il est caractérisé par une absence totale d'influence des propriétés des fluides (viscosités, tension interfaciale). Lorsque Ca augmente ($0{,}02 \lesssim$ Ca $\lesssim 0{,}05$), l'effet de la force visqueuse devient prépondérant (régime de *dripping,* figure 1.5 (b)), comme dans la situation faiblement confinée. Toutefois, le modèle simple de Thorsen et coll. [17] reste en désaccord avec les simulations, qui donnent plutôt $R_g \sim \left(\frac{1}{\mathrm{Ca}\,\varepsilon}\right)^{0,4}$. Ce désaccord est expliqué par le fait que l'effet de la surpression ne peut être totalement négligé. Lorsque le nombre capillaire augmente encore (Ca $> 0{,}05$), on observe un régime de *jetting,* où les gouttes se forment loin en aval (figure 1.5 (c)).

Ces trois régimes ont été observés expérimentalement [23–26] dans des canaux microfluidiques (figure 1.5 (d)). Les transitions entre chaque régime, calculées pour des phases de même viscosité,

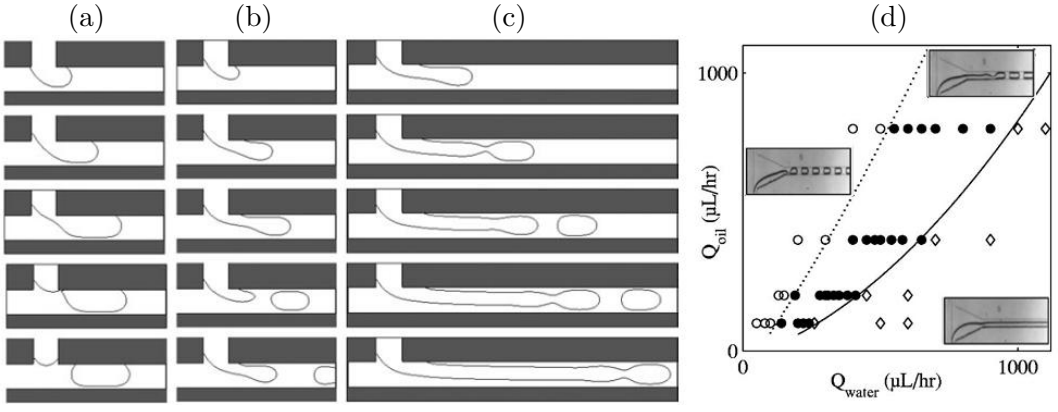

FIG. 1.5 – *Régimes de formation des gouttes à une jonction en T.* (a-c) *Prédictions numériques* [22] *pour* (a) Ca $= 0{,}004$ *(régime de* squeezing*),* (b) Ca $= 0{,}035$ *(régime de* dripping*) et* (c) Ca $= 0{,}05$ *(régime de* jetting*).* (d) *Diagramme d'écoulement dans le plan (Q_d, Q_c) faisant apparaître ces trois régimes* [23].

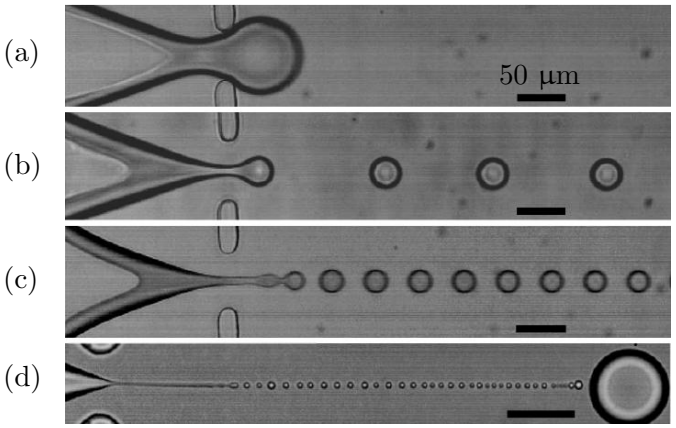

Fig. 1.6 – *Régimes de formation des gouttes en géométrie à focalisation d'écoulement.* (a) Squeezing *: le ménisque touche les parois du canal au niveau de la striction ;* (b) dripping *: le ménisque ne touche pas les parois mais la goutte se forme au niveau de la striction ;* (c) jetting *: le ménisque ne touche pas les parois et la goutte se forme en aval de la striction. Entre* (a) *et* (c) *le nombre capillaire croît.* (d) Tip streaming *: une goutte primaire étire le fluide interne en un filament qui se brise en gouttes de taille très petite devant celle de la striction. Ce régime n'est observable que lorsque des tensioactifs sont présents à une concentration suffisamment élevée. La barre d'échelle représente* 50 µm. *Tiré de* [32].

sont observées à des nombres capillaires plus grands lorsque la viscosité de la phase externe augmente.

Les géométries à écoulement croisé permettent la production de gouttes fortement monodisperses — des polydispersités inférieures à 2 % ont typiquement été atteintes [25–27] —, sur une large gamme de débits, indifféremment dans des géométries fortement ou très peu confinées.

1.1.4 Géométries à focalisation d'écoulement

La focalisation d'écoulement *(flow focusing)* consiste à accélérer localement l'écoulement d'un fluide autour d'un autre par l'intermédiaire d'une striction. La phase continue étire ainsi la phase dispersée, formant un jet fin qui se brise en gouttes (figure 1.1 (c)). Cette approche a été initialement développée en milieu infini par l'équipe de Gañán-Calvo à l'université de Séville [28]. Dans cette première expérience, un jet d'eau accéléré par un gaz se brise en gouttes monodisperses dont la taille dépend uniquement du débit de liquide et de la pression du gaz, pas de la géométrie de la striction ni de la viscosité ni de la tension de surface. Étendue à des jets composés (deux liquides immiscibles dans l'air, un gaz entouré de liquide dans l'air ou trois liquides immiscibles), cette méthode a permis la production de microcapsules [29] ou d'émulsions doubles [30].

La première intégration de cette approche à un dispositif microfluidique a été réalisée par Anna et coll. [31] dans le groupe de Stone à Harvard. Les auteurs observent la production d'émulsions mono- ou polydisperses, dont la taille peut être dictée soit par la taille de la striction, soit par le diamètre du filament liquide qui pointe à partir d'un ménisque de forme conique (régime de *tip streaming*). Trois régimes analogues à ceux observés sur les jonctions en T *(squeezing, dripping* et *jetting)* ont été décrits par la suite [32] et sont représentés sur la figure 1.6. Le régime de *tip streaming* est également observé à petit nombre capillaire lorsque des tensioactifs sont présents à une concentration élevée (figure 1.6 (d)). Les transitions entre ces régimes dépendent des conditions imposées, soit, en termes adimensionnés, du nombre capillaire et du rapport des débits.

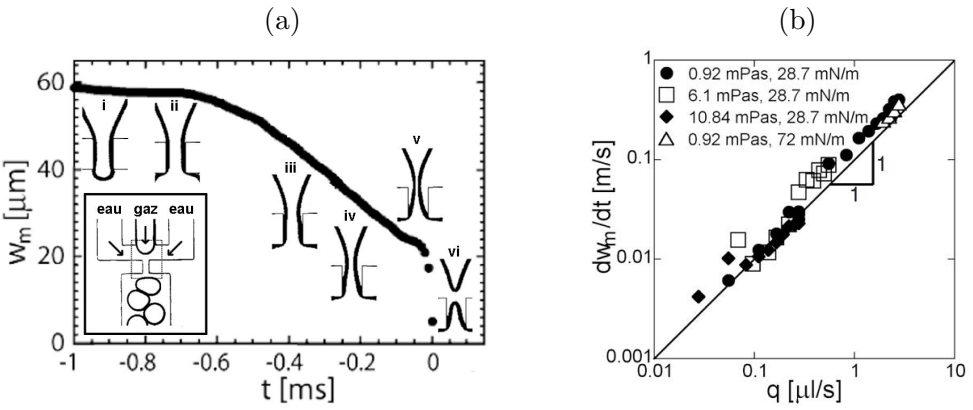

FIG. 1.7 – (a) *Dynamique de formation des bulles en régime de* squeezing. *L'origine du temps est prise à l'instant de rupture. La géométrie expérimentale est représentée en encart. Les images* i-vi *représentent la zone encadrée en trait pointillé de l'encart à différents instants (respectivement* $t = -0{,}95, -0{,}72, -0{,}39, -0{,}22, -0{,}03, 0$ ms*).* (b) *Vitesse de pincement du cou en fonction du débit de la phase externe lors de la deuxième étape* (iii-iv) *de la dynamique. La viscosité de l'eau est modifiée par l'ajout de glycérol, la tension de surface en ajoutant un tensioactif. Adapté de* [34].

Régime de fort confinement : *squeezing*

À petit nombre capillaire, la phase interne touche les parois du microcanal, conduisant à une obstruction partielle de la striction (figure 1.6 (a)). La taille de la goutte ainsi formée est plus grande que celle de l'orifice. Une étude menée avec des bulles à $\mathrm{Ca} \sim 10^{-1} - 10^{-3}$ [33, 34] a montré que la dynamique de ce régime présente trois étapes (figure 1.7 (a)). Dans un premier temps, le cou s'affine en amont de la striction (images i et ii sur la figure), la largeur minimale du cou w_m reste égale à celle de l'orifice. La seconde étape (iii et iv) voit la largeur minimale du cou décroître linéairement en temps. La vitesse d'amincissement est directement proportionnelle au débit de la phase externe et ne dépend pas des propriétés des fluides, comme le montre la figure 1.7 (b). La phase finale de la dynamique est marquée par une accélération de l'amincissement du cou (v), correspondant à un régime non linéaire d'instabilité [35] qui conduit à la rupture (vi). La transition entre ces deux dernières étapes coïncide avec le passage du cou d'une géométrie bidimensionnelle suivant la hauteur du microcanal à une géométrie tridimensionnelle non confinée. L'instabilité n'étant pas pilotée par la tension de surface [35], l'ensemble de la dynamique est indépendant de la tension de surface. Ce comportement est validé expérimentalement [33] et numériquement [36] par une loi d'échelle pour le volume V_b des bulles indépendante de la tension de surface :

$$V_b \propto \frac{p}{\eta_c Q_c} \tag{1.19}$$

avec p la pression de gaz imposée. Ce comportement est étendu qualitativement au cas des liquides visqueux [37]. À des nombres capillaires plus élevés mais toujours inférieurs à l'unité, des dynamiques non linéaires (cycles de grande périodicité, transition vers le chaos) comme celles représentées sur la figure 1.8 ont été observées avec des géométries constituées d'une [38] ou de plusieurs [39] strictions montées en série. Ce comportement correspond à une transition entre les régimes de *squeezing* et de *dripping*.

Régimes de faible confinement : *dripping* et *jetting*

Dans ces deux régimes, la phase interne s'affine et ne touche pas les bords du canal. En régime de *dripping,* la brisure se produit au niveau de la striction (figure 1.6 (b)) ; en régime de *jetting,* elle se produit en aval (figure 1.6 (c)). Les gouttes ainsi formées sont plus petites que la striction. Les gouttes se forment sous l'effet combiné d'une instabilité capillaire et de la traînée visqueuse [40]. Le régime de *dripping,* à nombre capillaire modéré, conduit à des gouttes ou des

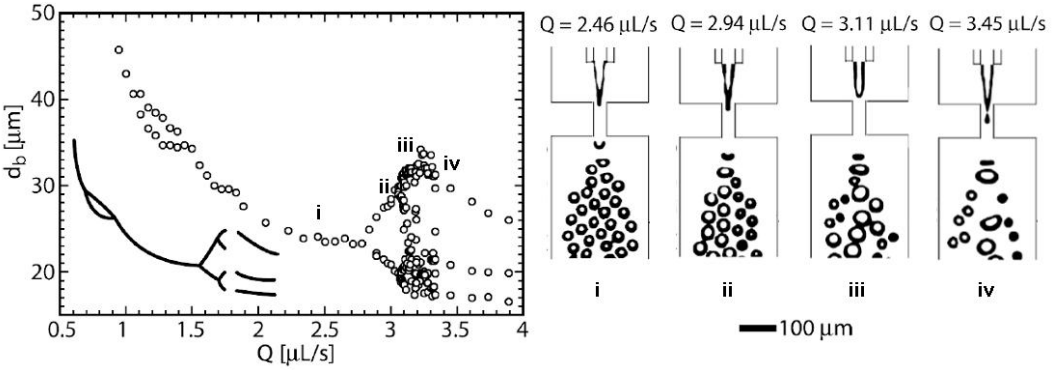

Fig. 1.8 – *Diamètre des bulles d_b en fonction du débit de la phase externe, à pression de gaz imposée. Les images* i-iv *montrent les bulles obtenues pour quatre débits différents. Le trait continu représente le diagramme de bifurcation simplifié correspondant. Tiré de* [38].

bulles très monodisperses (polydispersité inférieure à 2 %). Les populations de bulles de petite taille observées dans les dynamiques non linéaires (figure 1.8 et référence [38]) correspondent à des bulles formées en régime de *dripping*.

Le régime de *jetting* [28–30] conduit à la formation de gouttes moins homogènes qu'en *dripping* [37], dont la taille dépend du rayon du jet R_{jet}, de la viscosité de la phase continue et de la tension interfaciale [30] :

$$R_g = \left(\frac{15\, Q_d}{\pi} \frac{R_{jet}\, \eta_c}{\sigma} \right)^{\frac{1}{3}} . \tag{1.20}$$

Chacune des trois géométries présentées dans cette section permet la production d'émulsions suivant différents régimes. À petit nombre capillaire, ou lorsque les débits sont faibles, le confinement conduit à un régime — le *squeezing* — piloté essentiellement par le débit de la phase externe, sans influence de la tension interfaciale. Lorsque les débits augmentent, l'effet du confinement est moins sensible, conduisant à deux régimes — le *dripping* et le *jetting* — où la tension interfaciale intervient dans le processus de rupture. Ces deux régimes existent indépendamment de la géométrie — ils ont été initialement définis en milieu infini — et la transition sera explicitée plus loin au chapitre 7.

1.2 Manipulation d'écoulements microfluidiques

La manipulation d'écoulements en microcanal constitue un enjeu majeur en ingénierie microfluidique. Plusieurs approches ont été proposées dans la littérature [3, 4, 41], qui sont présentées succinctement dans cette section.

1.2.1 Écoulement de base

L'écoulement stationnaire d'un fluide visqueux incompressible entre deux plans parallèles sous l'effet d'un gradient de pression uniforme conduit à un profil de vitesse parabolique correspondant à un écoulement de Poiseuille plan. Dans le cas d'un écoulement unidimensionnel, pour des plans de longueur L et de largeur infinie, un calcul simple [42] conduit à l'expression du profil de vitesse

$$u_x(z) = \frac{h^2}{8\eta} \frac{\Delta p}{L} \left(1 - \frac{4z^2}{h^2} \right), \tag{1.21}$$

avec x la direction de l'écoulement, z la direction transverse orthogonale aux plans, h la distance entre les plans et $\frac{\partial p}{\partial x} = -\frac{\Delta p}{L}$ le gradient de pression. Le débit volumique par unité de largeur, q,

vérifie

$$q = \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} u_x(z)\,\mathrm{d}z = \frac{h^3}{12\eta}\frac{\Delta p}{L}. \tag{1.22}$$

L'extension de ce calcul à un canal de section rectangulaire $w \times h$ peut se faire à partir d'un développement en séries de Fourier [43]. Une estimation approchée du débit volumique total Q pour $h < w$ est alors

$$Q \simeq \frac{wh^3}{12\eta}\frac{\Delta p}{L}\left(1 - 0{,}630\frac{h}{w}\right). \tag{1.23}$$

Cette expression est valable à 0,2 % près lorsque $h = \frac{w}{2}$ [43].

Par analogie avec les circuits électriques, on définit la résistance hydrodynamique $\mathcal{R}$ d'un canal par

$$\mathcal{R} = \frac{\Delta p}{\rho Q}, \tag{1.24}$$

qui a pour dimension $\mathrm{L}^{-1}\mathrm{T}^{-1}$. Il découle alors de (1.23) un comportement géométrique de la forme $\mathcal{R} \sim \frac{L}{wh^3}$, qui implique que la réduction d'une des dimensions transverses, en particulier la plus petite, défavorise fortement l'écoulement. Cette observation constitue l'un des freins actuels au développement de technologies fluidiques à l'échelle submicrométrique (nanofluidique). Elle montre aussi que les conditions d'écoulement d'un fluide peuvent être contrôlées simplement à partir de la géométrie du microcanal.

1.2.2 Écoulements contrôlés par voie hydrodynamique

Plusieurs auteurs ont étudié le comportement de gouttes atteignant un embranchement en T [44, 45]. Ils ont montré que les gouttes se divisent lorsqu'un nombre capillaire construit sur les contraintes élongationnelles au point de stagnation dépasse une valeur critique. Par ailleurs, si l'embranchement est asymétrique, la taille des gouttes filles est fonction du rapport inverse de la longueur des bras de sortie, ce qu'illustre la figure 1.9 (a). La division des gouttes incidentes peut également être forcée de manière équivalente par un obstacle au sein du canal. Des arrangements de gouttes entièrement déterminés par sa position dans le canal ont ainsi été réalisés (figure 1.9 (b)).

L'effet de l'asymétrie d'une jonction a aussi été étudié sur un écoulement continu (un jet d'eau dans l'huile) [46]. Le jet se scinde à la jonction, empruntant majoritairement le bras de sortie le plus court. Lorsque le rapport des débits $\frac{Q_{huile}}{Q_{eau}}$ dépasse une valeur seuil, un comportement de type filtre est observé : le jet est totalement dévié. Ces régimes d'écoulements ne dépendent

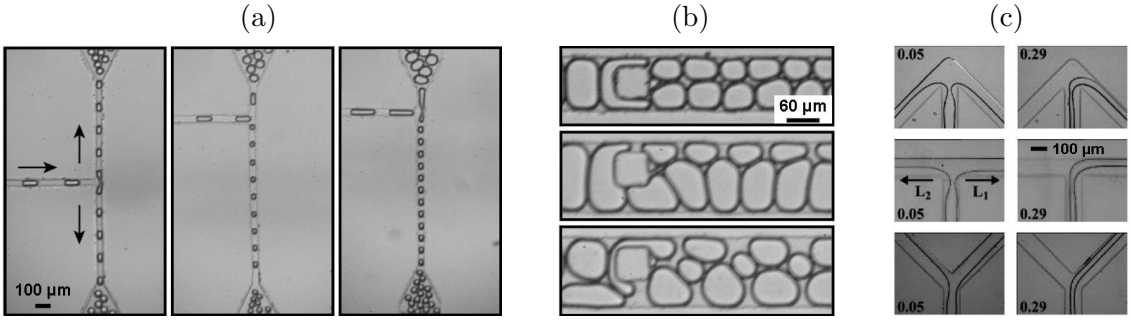

FIG. 1.9 – *Division de gouttes contrôlée par la géométrie* [44] *:* (a) *la taille des gouttes divisées par une jonction en T dépend de la longueur relative des deux bras de sortie ;* (b) *un obstacle dans le microcanal conduit à la brisure de la goutte incidente en deux gouttes dont la taille dépend de la position de l'obstacle (centrée sur l'image du haut, décentrée sur les deux autres). Des arrangements réguliers sont ainsi formés.* (c) *Un jet passe d'un régime d'écoulement partagé (série d'images de gauche) à un régime de filtre (série d'images de droite) lorsque le rapport des débits (valeur indiquée sur les images) dépasse une valeur critique. La longueur des bras de sortie vérifie* $\frac{L_2}{L_1} = 1{,}75$ [46].

pas de la forme de la jonction, comme le montre la figure 1.9 (c). L'asymétrie de taille et de forme d'une jonction permet également de séparer des gouttes selon leur taille [45, 47], du fait de l'asymétrie induite sur les lignes de courant.

Dans le cadre d'un écoulement diphasique, la résistance hydrodynamique peut également être modifiée par le trafic de gouttes. Celui-ci peut ainsi compenser l'effet d'asymétrie d'une jonction en T. Dans une configuration à petit nombre capillaire, où les gouttes ne se divisent pas, une transition entre un régime de filtre — toutes les gouttes passent par le bras le plus court — et un régime où des gouttes passent par chacun des bras est observée lorsque la densité de gouttes augmente [48]. Cet effet peut être appliqué à la réalisation d'une microfluidique combinatoire : des portes logiques [49, 50], basées sur la présence ou l'absence d'une goutte ou d'une bulle dans un canal ou à une jonction, et des mémoires commutatives [50, 51], basées sur le stockage ou la libération d'une bulle ou d'une bille dans un piège, ont par exemple été réalisées.

1.2.3 Écoulements contrôlés par une interaction fluide-structure

L'intégration de microactionneurs au sein des circuits microfluidiques a constitué la première approche pour un contrôle actif de l'écoulement. L'équipe de Quake [52] a ainsi, dès 2000, réalisé des vannes — appelées aujourd'hui « vannes de Quake » — et des pompes péristaltiques par lithographie à double couche, qui se basent sur l'élasticité du PDMS (polydiméthylsiloxane) utilisé pour la réalisation de microcanaux (voir l'annexe A). Un canal est moulé orthogonalement au canal microfluidique, dans un plan différent. La mise sous pression de l'air contenu dans ce canal bloque (dans le cas de la vanne) ou actionne (dans le cas de la pompe péristaltique) l'écoulement du fluide. À deux fluides, ce dispositif a été couplé aux géométries usuelles : écoulement parallèle [53], croisé [54, 55] ou focalisé [56]. La production de gouttes peut ainsi être déclenchée sur demande [54–56], le volume des gouttes et la fréquence d'émission pouvant être ajustés précisément (figure 1.10 (a)).

Une approche similaire a été développée par Weibel et coll. au sein du groupe de Whitesides à Harvard, qui ont remplacé le canal d'activation par une vis. Ils ont ainsi réalisé des vannes (figure 1.10 (b)), baptisées « vannes à vis » [57] et des pompes [58] analogues à celles de l'équipe de Quake.

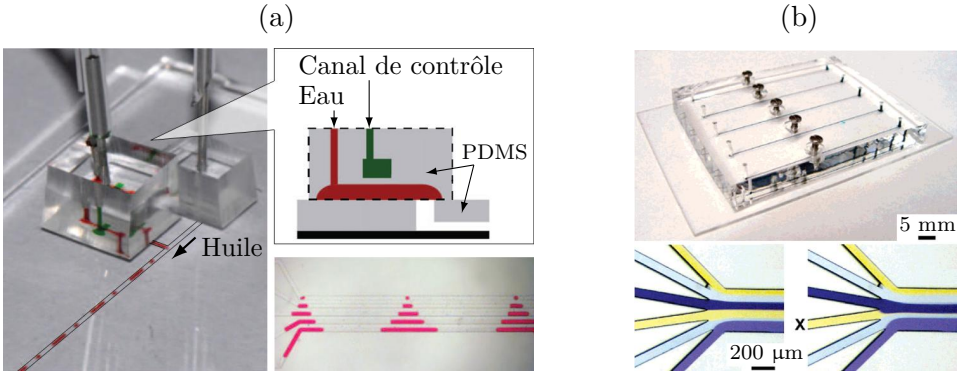

Fig. 1.10 – *Deux exemples de vannes micromécaniques.* (a) *Implantation d'une « vanne de Quake » sur une jonction en T* [55]. *L'écoulement de l'eau, marquée avec un colorant rouge, est interrompu lorsque le canal de contrôle, rempli d'eau contenant un colorant vert, est pressurisé. La photo de gauche montre les gouttes ainsi produites. Le schéma en haut à droite représente une coupe transverse du dispositif, montrant la position relative des canaux. La photo en bas à droite montre les gouttes émises par cinq vannes indépendantes montées en parallèle.* (b) *Vannes à vis montées sur une puce microfluidique* [57]. *Sur les photos du bas, un microcanal convergeant est empli de solutions de colorants. Chaque bras est contrôlé par une vanne : sur la photo de gauche, toutes sont ouvertes ; sur la photo de droite, celle correspondant au canal indiqué par une croix est fermée.*

L'interaction fluide-structure peut également être utilisée de manière passive pour créer un mouvement chaotique au sein du fluide en écoulement, dans le cadre d'une problématique associée au mélange en microfluidique [59]. À petit nombre de Reynolds, l'écoulement est régi par l'équation de Stokes (1.10), caractérisée par un terme d'advection négligeable devant le terme visqueux. Cette configuration est défavorable au processus de mélange, qui ne peut alors s'opérer que par diffusion. Engendrer un mouvement chaotique impose d'entrecroiser les lignes de courant de l'écoulement initialement laminaire. Des structures en forme d'arêtes de poisson asymétriques, gravées en bas-relief sur la surface inférieure du microcanal, permettent de créer un tel mouvement chaotique sur un écoulement continu [60]. Le mélange chaotique au sein de gouttes peut être réalisé dans des canaux formant une succession de zigzags [61].

1.2.4 Écoulements induits par des effets interfaciaux

Dans les systèmes de petite dimension, le faible rapport surface à volume est particulièrement favorable aux effets de surface et d'interface. Ces effets ont donc été largement utilisés pour déplacer des microgouttes sur des surfaces libres ou dans des capillaires.

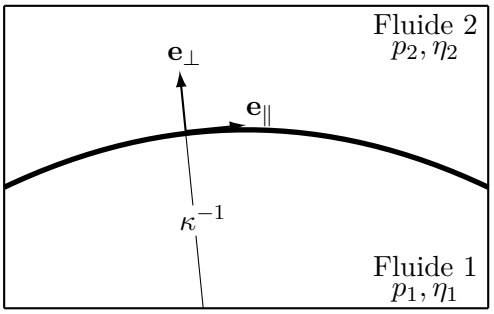

FIG. 1.11 – *Représentation d'une interface séparant deux fluides.*

Considérons deux fluides 1 et 2 séparés par une interface de courbure moyenne κ, comme représenté sur la figure 1.11. On note $x_\perp$ et $x_\parallel$ les directions respectivement normale et tangentielle à cette interface, $\mathbf{e}_\perp$ et $\mathbf{e}_\parallel$ les vecteurs unitaires correspondants ($\mathbf{e}_\perp$ étant orienté du fluide 1 vers le fluide 2). L'équilibre des contraintes à l'interface s'écrit

$$(p_2 - p_1)\,\mathbf{e}_\perp + \left(\eta_1\left([\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_1] + {}^t[\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_1]\right) - \eta_2\left([\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_2] + {}^t[\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_2]\right)\right)\cdot\mathbf{e}_\perp = -\sigma\kappa\mathbf{e}_\perp + \frac{\partial\sigma}{\partial x_\parallel}\mathbf{e}_\parallel \tag{1.25}$$

où $[\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}]$ est le tenseur des taux de déformation. Cette expression peut se projeter sur les axes $\mathbf{e}_\perp$ et $\mathbf{e}_\parallel$ [62] pour faire apparaître l'équilibre des contraintes normales

$$p_2 - p_1 + 2\left(\eta_1\frac{\partial u_{\perp,1}}{\partial x_\perp} - \eta_2\frac{\partial u_{\perp,2}}{\partial x_\perp}\right) = -\sigma\kappa \tag{1.26}$$

et tangentielles

$$\eta_1\left(\frac{\partial u_{\perp,1}}{\partial x_\parallel} + \frac{\partial u_{\parallel,1}}{\partial x_\perp}\right) - \eta_2\left(\frac{\partial u_{\perp,2}}{\partial x_\parallel} + \frac{\partial u_{\parallel,2}}{\partial x_\perp}\right) = \frac{\partial\sigma}{\partial x_\parallel}, \tag{1.27}$$

où les indices $\perp$ et $\parallel$ désignent respectivement les composantes normale et tangentielle à l'interface. Ainsi :

- une modification homogène de la tension interfaciale modifie les contraintes normales auxquelles est soumise l'interface : la force capillaire ainsi créée a été introduite à la section 1.1.1 (relation (1.4)) ;

– une modulation spatiale de la tension interfaciale modifie les contraintes tangentielles : l'effet global résultant de cette modification est appelé effet Marangoni et sera étudié plus en détail au prochain chapitre.

Par ailleurs, les liquides déposés sur des surfaces solides subissent également des forces du fait du mouillage. La projection sur le plan solide des forces s'appliquant sur un point triple conduit à un équilibre donné par la relation de Young,

$$\sigma \cos\theta = \sigma_{sg} - \sigma_{sl}, \tag{1.28}$$

où θ est l'angle de contact et σ, σ_{sg} et σ_{sl} les tensions de surface (ou énergies libres de surface) liquide-gaz, solide-gaz et solide-liquide respectivement. Le signe du membre de droite traduit le caractère mouillant ou non mouillant du solide : s'il est positif, l'énergie libre de surface correspondant à l'interface solide-gaz est plus grande que celle correspondant à l'interface solide-liquide. Le mouillage du solide par le liquide est alors favorable d'un point de vue énergétique. Cet effet peut être modulé pour déplacer des gouttes.

Un article de revue [63] reprend différentes réalisations basées sur la modulation des contraintes capillaires dans le cadre des systèmes microfluidiques.

Mouillage et capillarité

Une asymétrie des forces capillaires de part et d'autre d'une goutte peut entraîner sa migration. Considérons ici le cas d'une goutte mouillante au sein d'un capillaire (figure 1.12 (a)).

Lorsqu'une goutte se trouve dans un capillaire conique (image i), les ménisques correspondant à chaque extrémité de la goutte ont une courbure différente. La pression de Laplace est donc différente de chaque côté de la goutte. Il en résulte une surpression du fluide du côté le plus large, qui déplace la goutte vers la pointe du capillaire [64].

Un gradient de mouillabilité (ii-v) peut également être exploité. La goutte se déplace alors vers les zones de plus forte affinité pour diminuer son énergie de surface. Une méthode pour créer un tel gradient consiste à texturer la surface du capillaire (ii). Cette méthode a été appliquée à des microcanaux pour réaliser une vanne de pression (figure 1.13 (a) et référence [65]), où l'écoulement du fluide dans un canal donné n'est possible qu'au-delà d'une pression seuil, ou pour confiner sans paroi des écoulements multiphasiques [66]. La mouillabilité de la surface du capillaire peut également être modulée optiquement [67], par exemple lorsqu'elle est recouverte d'un agent photosensible (image iii sur la figure 1.12 (a) ; référence [68]). Le gradient de mouillabilité peut aussi être créé par le liquide lui-même. Un liquide réactif, contenant une molécule susceptible de se déposer sur la surface et d'en modifier la mouillabilité (iv), se déplace ainsi de manière autonome [69]. Lorsque plusieurs gouttes de liquides mouillants et non miscibles sont juxtaposées (v), l'ensemble se déplace du côté de la goutte la plus mouillante. Le film de lubrification laissé par la multigoutte permet de transporter des gouttes très visqueuses dans des milieux confinés [70]. Les multigouttes, tout comme les fluides réactifs, sont assez peu utilisés en microfluidique.

Enfin, un déséquilibre des contraintes normales peut être induit par un gradient de température (vi). En effet, la tension de surface étant une fonction, généralement décroissante, de la température, une différence de température entre les deux extrémités d'une goutte conduit à une différence de pression de Laplace. La migration de la goutte qui en résulte est orientée du côté où la tension de surface est la plus grande, c'est-à-dire, en général, le côté froid. Néanmoins, cet effet peut être compensé par le gradient de mouillabilité qui résulte également de la variation de tension de surface sous l'effet de la température. Plusieurs travaux ont démontré la possibilité d'induire un tel pompage « thermocapillaire » [1] dans des tubes capillaires [71–73] ou en géométrie

1. Le terme « thermocapillaire » fait en principe référence à un effet Marangoni d'origine thermique. S'il s'agit

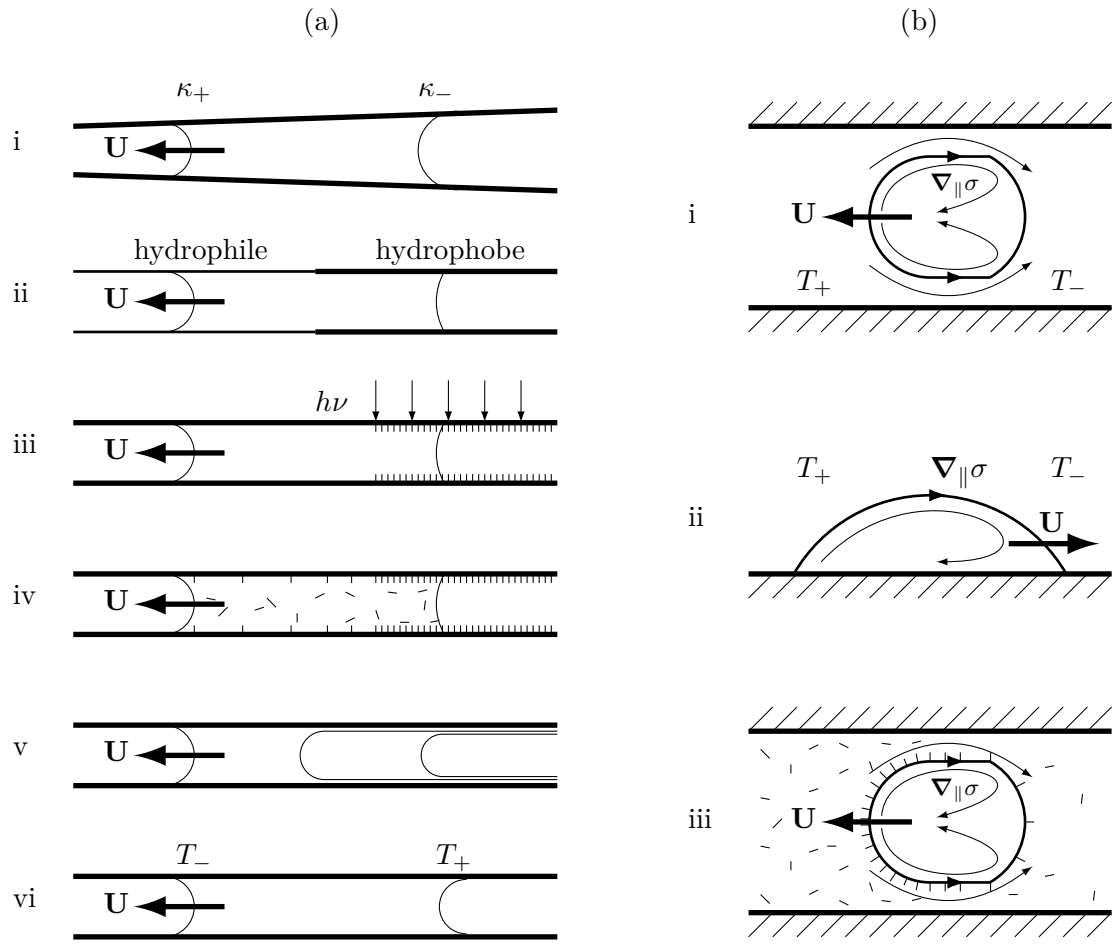

FIG. 1.12 – *Migration de gouttes sous l'effet* (a) *d'une contrainte normale (pompage capillaire),* (b) *d'une contrainte tangentielle (effet Marangoni).* (a) *Le pompage capillaire d'une goutte mouillante au sein d'un tube peut être engendré par :* i *un tube conique,* ii *une texturation de la surface,* iii *la modification chimique d'une surface photosensible,* iv *la présence d'un agent actif dans la goutte,* v *des bigouttes laissant un film de mouillage au cours de l'écoulement,* vi *un gradient de température.* (b) *Migration par effet Marangoni d'une goutte* i *immergée au sein d'une phase continue visqueuse ou* ii *posée sur une surface solide. Cette migration est due à un gradient tangentiel de tension interfaciale* $\boldsymbol{\nabla}_\parallel\sigma$*, souvent induit par un gradient de température, parfois* iii *par un gradient de concentration en tensioactif dans la phase continue.*

planaire (configuration de Hele-Shaw) [74, 75]. Des vitesses de migration inférieures au $\mathrm{mm}\cdot\mathrm{s}^{-1}$ sont ainsi atteintes pour une différence de température de quelques dizaines de degrés.

Effet Marangoni

L'effet Marangoni (figure 1.12 (b)) est dû à une modulation de la tension interfaciale $\boldsymbol{\nabla}_\parallel\sigma$ parallèlement à l'interface. La contrainte tangentielle ainsi créée engendre un écoulement interfacial, purement tangentiel, orienté dans le sens des tensions interfaciales croissantes. Cet écoulement diffuse dans le volume, de part et d'autre de l'interface, par effet de viscosité. Ainsi, dans le cas d'une goutte immergée au sein d'un autre fluide visqueux (image i), la contrainte crée un écoulement simultanément dans la goutte et dans la phase continue. Ce dernier écoulement, analogue à celui engendré par la brasse du nageur, est responsable du déplacement de la goutte en sens opposé en réaction à l'action de la goutte sur le fluide, de la même façon qu'un nageur avance en repoussant l'eau vers l'arrière.

bien dans le cas présent d'un effet capillaire dépendant de la température, l'emploi de ce terme est néanmoins abusif.

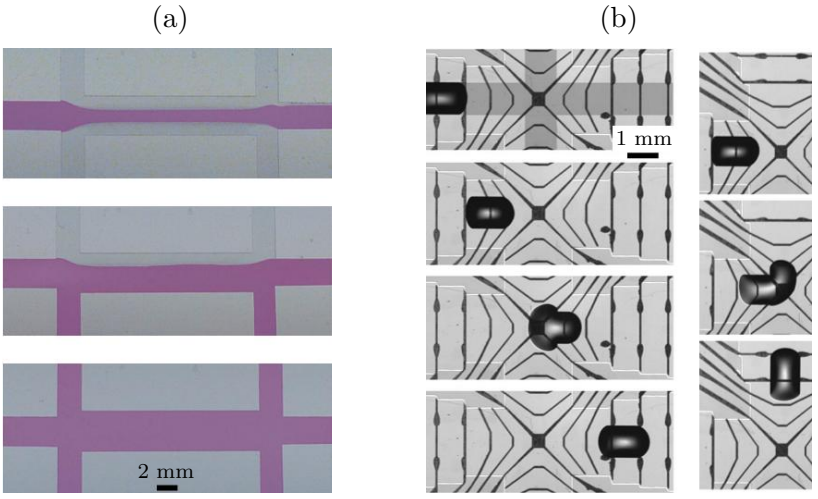

Fig. 1.13 – (a) *Vanne de pression induite par un gradient de mouillabilité* [65]. *Sous l'effet d'un gradient de pression, un liquide aqueux s'écoule dans le canal horizontal, confiné hors des canaux adjacents traités hydrophobes. L'augmentation graduelle du gradient de pression permet au liquide de s'écouler successivement dans les canaux du bas et du haut, d'hydrophobicité croissante.* (b) *Migration thermocapillaire d'une goutte posée sur un substrat texturé chimiquement (bande gris foncé sur l'image en haut à gauche) pour guider l'écoulement* [76]. *Les bandes noires sont des résistances chauffantes. Sur la séquence d'images à gauche, la goutte est déplacée en ligne droite ; sur celle de droite, elle bifurque. La vitesse de migration est de l'ordre de* 10 $\mu m \cdot s^{-1}$.

Dans le cas d'une goutte posée (ii), la contrainte s'applique sur la surface libre, mais la conservation de la matière impose l'existence d'un contre-écoulement opposé à l'écoulement interfacial. La goutte se déplace alors, par un effet de « roulement » sur la surface de contact, dans le même sens que l'écoulement de la surface libre. Notons que, dans ce cas, la goutte subit aussi un gradient de mouillabilité dû à la différence de tension de surface entre ses extrémités chaude et froide.

L'approche la plus répandue pour engendrer un gradient de tension interfaciale est la voie thermique. La tension interfaciale dépendant, on l'a vu, de la température, un gradient de température générera sur l'interface une contrainte appelée thermocapillaire, orientée en général vers les zones froides. En milieu ouvert (figure 1.13 (b)), la migration de gouttes [76–78] ou de films [79] a ainsi été reportée. Le mouvement thermocapillaire, ici engendré à partir d'un chauffage d'origine électrique, peut être confiné dans une direction particulière par le biais d'une texturation chimique de la surface. Une approche élégante pour confiner le mouvement de gouttes au sein de films liquides a récemment été proposée [80]. Des sources thermiques de différentes géométries créent une distribution de température suivant un motif prédéfini, délimitant ainsi des pièges ou des canaux virtuels.

La température peut être contrôlée finement à échelle locale en utilisant des sondes AFM [81], en chauffant optiquement un liquide absorbant [82–85] ou la surface solide [86], ou par désexcitation d'un plasmon de surface [87, 88].

D'autres utilisations des écoulements thermocapillaires ont aussi été reportées. Des gouttes ont récemment été maintenues en lévitation thermocapillaire au voisinage d'une surface [89]. D'autre part, les écoulements internes ont été proposés dans le cadre d'une application au mélange chaotique dans des gouttelettes [90, 91].

Une autre approche, assez peu répandue, pour engendrer un effet Marangoni, consiste à moduler la tension interfaciale *via* un gradient de concentration en molécules actives (figure 1.12 (b), image iii). Cet effet est appelé solutocapillarité. Le gradient de concentration, qui tend naturellement à s'atténuer, doit alors être assisté par un champ extérieur. Les molécules peuvent ainsi être produites ou détruites par voie électrochimique, et leurs propriétés actives peuvent

être modifiées par l'application d'une tension électrique ou sous irradiation.

L'effet Marangoni constitue une approche élégante pour manipuler des écoulements microfluidiques. Cependant, si la preuve de principe a été largement démontrée en environnement peu confiné, les travaux faisant état de son intégration au sein de microcanaux demeurent peu nombreux. Cette carence semble plutôt surprenante compte tenu de la diversité des approches, dont la faisabilité et l'intégrabilité ont été largement démontrées par ailleurs, proposées pour engendrer cet effet.

1.2.5 Écoulements contrôlés par des effets thermiques

Outre les effets capillaires décrits à la section précédente, plusieurs approches basées sur la modulation thermique des grandeurs impliquées dans la formation et l'écoulement de gouttes ont été développées. Ainsi, la dépendance thermique de la tension interfaciale et de la viscosité offre un paramètre de contrôle de la formation de gouttes indépendant des débits dans une géométrie à focalisation d'écoulement [92, 93]. Un pompage thermopneumatique, où la surpression d'un gaz chauffé déplace des gouttes dans un capillaire, a été reporté [94]. Plus récemment, l'expansion thermovisqueuse d'un fluide, basée sur la dépendance thermique de sa viscosité et de sa masse volumique, a été utilisée pour induire son écoulement [95]. Une telle approche, basée sur un effet purement volumique, est cependant pénalisée *a priori* aux petites dimensions par un comportement d'échelle défavorable.

D'autres approches sont basées sur un effet intrinsèquement thermique, qui ne dépend pas des propriétés des fluides. Ainsi, des gouttes lévitant par effet Leidenfrost sur une surface texturée en dents de scie deviennent auto-mouvantes [96]. Un cycle de changements de phase (évaporation, condensation et coalescence) induits par chauffage laser d'une goutte contenant des nanoparticules métalliques conduit également à un déplacement net du liquide qui suit la translation du faisceau laser, jusqu'à une vitesse de l'ordre de 100 $\mu m \cdot s^{-1}$ [97]. En dépit de leur intérêt académique, ces approches restent néanmoins marginales.

1.2.6 Écoulements contrôlés par des effets électriques

Un champ électrique $\mathbf{E}$ peut induire des écoulements de fluide en volume [98]. On distingue alors trois effets : l'électro-osmose, l'électrophorèse et la diélectrophorèse.

Électro-osmose

L'électro-osmose (figure 1.14 (a)) est associée à la présence d'électrolytes dans le liquide. Les charges issues de la dissociation de l'électrolyte ionisent localement la surface. Des contre-ions de charge opposée aux charges présentes en solution se fixent sur la paroi sous l'effet des forces attractives. Les autres charges, de même signe ou de signe opposé, occupent une seconde couche dont la structure résulte de l'équilibre entre l'agitation thermique et les forces électrostatiques. La double couche ainsi créée, appelée double couche de Debye-Hückel, écrante la charge de surface au-delà d'une longueur caractéristique appelée longueur de Debye et généralement notée λ_D. Cette longueur, typiquement de l'ordre de 1 à 100 nm dans l'eau, décroît comme l'inverse de la racine carrée de la concentration en ions dans la solution. Le fluide est électriquement neutre hors de la double couche électrique. Un champ électrique externe horizontal induit un mouvement des charges présentes dans la double couche de Debye-Hückel, qui entraîne l'ensemble du fluide à une vitesse $\mathbf{U}$ qui peut atteindre quelques $mm \cdot s^{-1}$ pour un champ de l'ordre du $kV \cdot cm^{-1}$. L'effet inverse, la création d'un champ électrique sous l'effet d'un écoulement, peut également être observé (on parle alors de potentiel d'écoulement). Contrairement à l'écoulement induit par un gradient de pression, au profil parabolique (éq. (1.21)), l'écoulement induit par électro-osmose a un profil quasiment plat. Ceci est dû au fait que le mouvement du liquide loin de la double couche de Debye-Hückel peut être assimilé à un glissement sur cette couche.

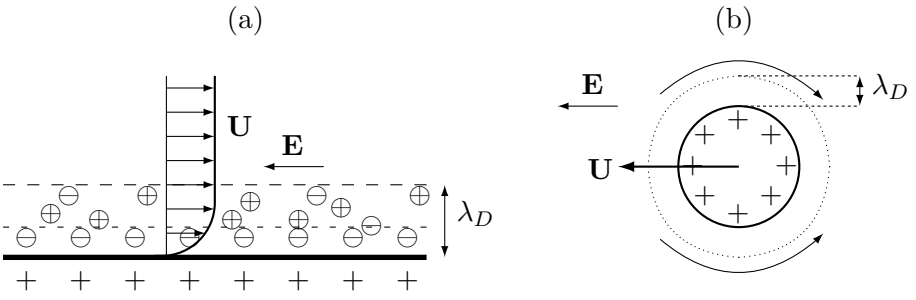

Fig. 1.14 – *Schémas de principe* (a) *de l'électro-osmose et* (b) *de l'électrophorèse.*

Lorsque la densité de charges de surface est homogène, l'écoulement induit par électro-osmose est parallèle au champ électrique. En étudiant l'effet de l'inhomogénéité de la densité de charges, Ajdari a montré que des écoulements tridimensionnels peuvent être créés [99, 100] : une modulation périodique de la densité de charges de surface peut engendrer des rouleaux de convection ou un champ de vitesse multidirectionnel dont l'orientation moyenne est parallèle au champ électrique [101]. Une pompe microfluidique utilisant cet effet a été envisagée [102].

Une manière élégante d'engendrer une inhomogénéité du champ électrique consiste à éclairer une surface photoconductrice constituant l'une des parois du microcanal [103]. L'illumination locale du matériau augmente localement sa conductivité. Le champ électrique diminue ainsi au point éclairé, ce qui module l'écoulement électro-osmotique. Implantée au sein d'un microcanal en forme de Y, cette approche a permis de réaliser un aiguillage microfluidique.

Électrophorèse

Si une solution électrolytique comporte des particules chargées en suspension, une double couche électrique se crée au voisinage de ces particules (figure 1.14 (b)). Un écoulement est alors induit, de façon analogue au flux électro-osmotique, qui provoque en réaction la migration de la particule dans la direction opposée à l'écoulement moyen autour de la particule. Cet effet est appelé électrophorèse. Il est exploité notamment pour la séparation d'ions en capillaire, la vitesse d'écoulement électrophorétique d'une particule dépendant de sa mobilité. En microcanal, la coalescence, la séparation (figure 1.15 (a)) et l'aiguillage de gouttes chargées ont été observés [104].

Comme pour l'électro-osmose, l'effet inverse, appelé potentiel de sédimentation, existe. Il consiste en la création d'un champ électrique par le déplacement de particules chargées.

Diélectrophorèse

Un troisième effet de nature électrique, la diélectrophorèse, peut être induit sur des particules neutres. La force de Coulomb, nulle à l'échelle de la particule, agit sur les charges dont elle est constituée, induisant une polarisation de la particule. Soumise à un champ inhomogène, la particule est alors attirée vers les maxima du champ. La force d'attraction correspondante est proportionnelle à la polarisabilité de la particule et au gradient du carré du module du champ.

L'effet s'applique également au solvant si celui-ci est polarisable. Lorsque la polarisabilité du solvant est plus grande que celle des particules, la force d'attraction exercée sur le solvant dépasse celle exercée sur les particules, qui tendent à s'accumuler vers les minima de champ électrique. On parle alors de diélectrophorèse négative.

Le comportement d'échelle de la polarisabilité d'une particule, proportionnelle à son volume, est plutôt défavorable à petite échelle. En revanche, des gradients de champ importants peuvent être obtenus avec des électrodes miniaturisées. L'utilisation de la force diélectrophorétique dans le contexte de la microfluidique et de la microanalyse demeure donc pertinente. De nombreux exemples de manipulations d'écoulements microfluidiques sont reportés dans la littéra-

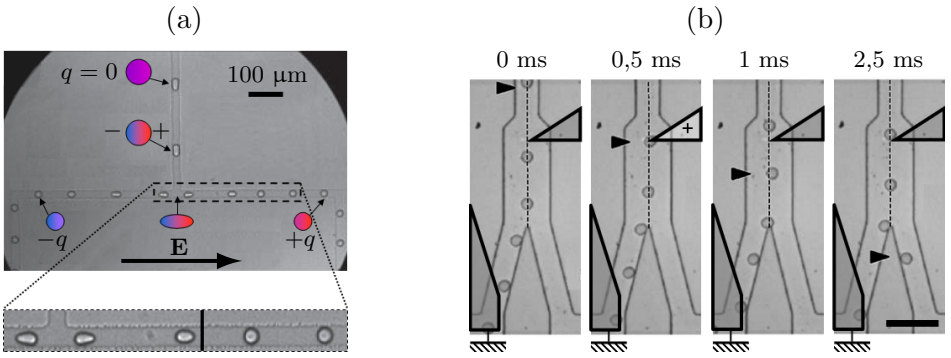

FIG. 1.15 – (a) *Séparation de gouttes par électrophorèse : des gouttes initialement non chargées sont polarisées par un champ électrique* **E**. *Lorsqu'elles atteignent l'embranchement, elles se divisent, chaque goutte fille devient chargée du fait de la répartition des charges avant la division* [104]. *L'agrandissement montre que les gouttes sont déformées lorsqu'elles se trouvent entre les électrodes (trait noir vertical).* (b) *Tri de gouttes non chargées par diélectrophorèse : à un embranchement en Y asymétrique, des gouttes empruntent spontanément le canal de gauche. L'application d'une impulsion électrique (de durée* 500 µs*) force la goutte repérée par une flèche à suivre une autre ligne de courant, ce qui l'aiguille vers le canal opposé* [105]. *Les électrodes, transparentes, ont été redessinées. La barre d'échelle mesure* 100 µm.

ture. L'équipe de Weitz à Harvard a ainsi réalisé un aiguillage (figure 1.15 (b) et référence [105]), capable d'orienter des gouttes dont la vitesse d'écoulement atteint plusieurs $\mathrm{cm \cdot s^{-1}}$. La force diélectrophorétique correspondante est estimée de l'ordre de 10^{-8} N pour un champ appliqué de l'ordre du $\mathrm{kV \cdot mm^{-1}}$. La coalescence de gouttes non chargées a aussi été montrée [106] : le rapprochement des deux gouttes entre les électrodes conduit à la rupture du film liquide qui les sépare. Enfin, cet effet peut être appliqué au piégeage de particules de dimension submicrométrique en suspension [107,108], fournissant notamment un outil de caractérisation des propriétés diélectriques des particules piégées.

1.2.7 Micromanipulations optiques

Les travaux pionniers d'Ashkin sur les effets mécaniques de la lumière [109], initiés au début des années 1970 aux AT&T Bell Labs, ont ouvert la voie à un champ d'investigations s'étendant du refroidissement d'atomes par laser à l'étude d'objets biologiques [110].

Forces optiques

Les forces optiques, aussi appelées pression de radiation, résultent d'un transfert de quantité de mouvement de la lumière à un objet diélectrique. Elles peuvent être décrites dans le cadre de l'optique géométrique pour des particules grandes devant la longueur d'onde de la lumière. Considérons une particule sphérique que l'on suppose non réfléchissante, plus réfringente que le milieu environnant. Cette sphère est placée dans un faisceau lumineux, comme le représente la figure 1.16 (a). Deux rayons a et b parallèles, symétriques par rapport au plan équatorial de la particule, subissent chacun une double réfraction. L'impulsion de chaque photon est alors modifiée, une partie étant transférée à la particule de sorte que la quantité de mouvement totale est conservée. Si les deux rayons a et b ont même intensité (gradient d'intensité nul), la force nette exercée sur la particule est orientée dans la direction de propagation du faisceau et est directement proportionnelle à son intensité. Si l'intensité du rayon a est plus grande que celle du rayon b, les composantes transverses des forces induites par chaque rayon ne se compensent plus. La force nette comporte une composante axiale, proportionnelle à l'intensité lumineuse totale, et une composante transverse, orientée vers le maximum d'intensité et proportionnelle au gradient d'intensité. Ces deux forces sont généralement appelées force diffusive F_{scat} et force en gradient F_{grad} respectivement : la première tend à éloigner la particule de la source lumineuse, la seconde tend à la piéger dans un maximum d'intensité, par exemple l'axe d'un faisceau laser.

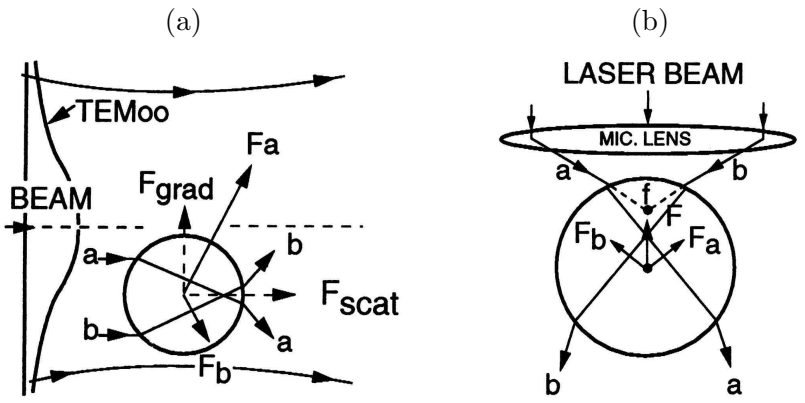

Fig. 1.16 – (a) *Bilan des forces optiques s'exerçant sur une particule diélectrique sphérique placée dans un faisceau gaussien* TEM_{00}. (b) *Origine de la force F responsable du piégeage axial d'une particule dans un faisceau laser focalisé. Tiré de* [110].

Lorsque le faisceau est focalisé, il existe un maximum d'intensité axial dans le plan focal. La force en gradient présente donc aussi une composante axiale orientée vers ce plan, et peut donc rapprocher la particule de la source lumineuse (figure 1.16 (b)). La position d'équilibre de la particule correspond donc au point où la composante axiale de la force en gradient compense la force diffusive et les forces externes telles que la gravité ou les forces liées à l'interaction avec l'environnement. La particule peut ainsi être piégée dans les trois dimensions de façon stable. Cet effet est appelé « pinces optiques » *(optical tweezers)* [111].

Pour des particules petites devant la longueur d'onde de la lumière, l'approximation dipolaire permet une description quantitative des forces optiques. La force diffusive résulte de la diffusion Rayleigh. La force en gradient provient de l'interaction du dipole avec le champ électrique. Elle est donc analogue à la force diélectrophorétique évoquée plus haut.

Manipulation de particules en environnement microfluidique

L'application des pinces optiques à la microfluidique fait l'objet d'une littérature abondante [112]. Au-delà de la manipulation individuelle de cellules ou d'objets en écoulement [113, 114], elles sont notamment utilisées pour piloter des microcomposants fluidiques et des micromoteurs, trier des particules mésoscopiques ou des cellules, ou encore sonder localement des écoulements microfluidiques [115]. Ces applications nécessitent généralement de disposer de plusieurs pinces optiques indépendantes à partir d'un unique faisceau laser, et de les faire évoluer simultanément. Parmi les approches développées, l'holographie constitue l'une des plus prometteuse du fait de la possibilité de générer des hologrammes par ordinateur [116].

La mise en rotation d'éléments de micromoteurs (figure 1.17 (a)) nécessite d'appliquer un couple sur l'objet piégé. La force diffusive s'exerçant sur un objet de forme hélicoïdale peut induire la rotation de microrotors, à la base de micromachines optomécaniques complexes [117]. Un tel objet peut être microfabriqué par photopolymérisation à deux photons. Un transfert de moment angulaire de la lumière à l'objet constitue également une approche intéressante. La lumière polarisée circulairement possède un moment de spin égal à $\pm\hbar$ par photon, qu'elle peut transmettre à un objet constitué d'un matériau biréfringent [118] ou présentant une biréfringence de forme [119]. Le moment orbital d'un vortex optique peut également mettre en rotation un ensemble de particules piégées, induisant un pompage du fluide [120].

Pour aiguiller ou trier des particules ou des cellules en écoulement dans un microcanal (figure 1.17 (b)), les forces optiques doivent pouvoir s'appliquer au-delà de la seule localisation du spot laser, de façon à pouvoir se comporter comme un « canal sans mur » guidant l'écoulement. Une approche consiste à faire balayer le faisceau selon un motif prédéfini, à une fréquence supérieure à celle associée au temps caractéristique de la diffusion brownienne, ce qui conduit à

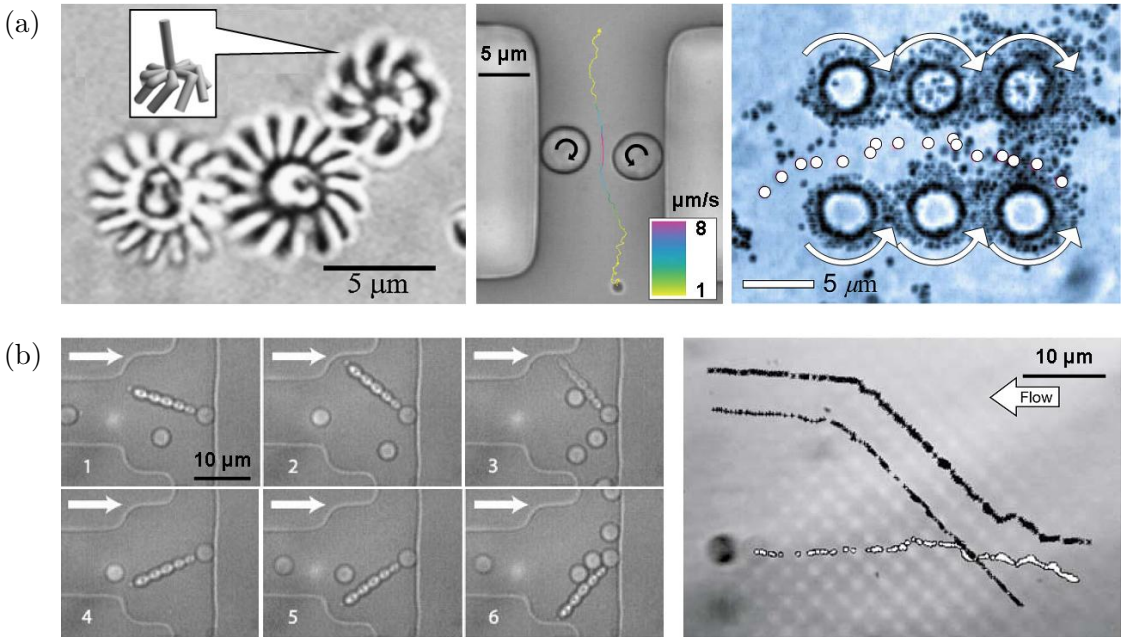

FIG. 1.17 – (a) *Exemples de micromachines optofluidiques. De gauche à droite : un objet de forme hélicoïdale (représenté en encart) mis en rotation par la pression de radiation entraîne deux roues d'un microengrenage dont l'axe est fixé sur la surface du microcanal* [117]. *La rotation de deux particules biréfringentes par deux faisceaux de polarisation circulaire opposée pompe le fluide qui entraîne une particule micrométrique de silice* [118]. *Un arrangement de six vortex optiques induit chacun la rotation d'une assemblée de sphères de silice de* 800 nm *(points noirs sur l'image), provoquant un mouvement du fluide vers la gauche* [120]. *Les ronds blancs représentent les positions successives d'une particule advectée par le fluide.* (b) *Aiguillage et tri de particules en écoulement. De gauche à droite : le piégeage de plusieurs particules colloïdales par balayage du faisceau permet de réaliser une porte qui laisse passer des sphères dans l'un (images* 1-3*) ou l'autre (images* 4-6*) des canaux d'un embranchement* [121]. *Fractionnement d'une suspension, par un réseau optique, basé sur les différences de polarisabilité (dépendant de la taille) des particules : les particules de* 2 µm *(croix noires) sont déviées, pas celles de* 4 µm *(ronds blancs)* [122].

un piège optique effectif dont la forme correspond à ce motif [121]. Un réseau optique tridimensionnel couvrant toute la surface d'un microcanal permet de trier passivement des particules, *via* leur interaction avec le réseau, selon leur polarisabilité [122]. Enfin, des particules guidées par le piège linéaire constitué par une barre laser pourront être dirigées sur une ligne de courant spécifique [123, 124].

Manipulation d'interfaces liquides

Bien que l'utilisation de la pression de radiation pour manipuler directement des interfaces liquides ait été suggérée par Ashkin et Dziedzic dès 1973 [125], ce domaine reste encore largement inexploré. En effet, la faible amplitude de la pression de radiation (de l'ordre du pN) comparée notamment à la force de tension superficielle ne permet de réaliser que des déformations d'amplitude (sub)micrométriques. Des déformations de plus grande amplitude sont néanmoins étudiées depuis une dizaine d'années au CPMOH [126]. En travaillant sur des microémulsions au voisinage du point critique, caractérisées par des tensions interfaciales de l'ordre de 10^{-7} N $\cdot$ m^{-1}, Alexis Casner et Jean-Pierre Delville ont ainsi réalisé des déformations d'amplitude supérieure à la dizaine de µm. Le sens de la déformation est vu indépendant du sens de propagation du faisceau [127], pouvant conduire à la formation de ponts liquides [128] comme l'illustre la figure 1.18 (a). Cette invariance provient du fait que le transfert de quantité de mouvement ne dépend que du contraste d'indice et pas du sens de propagation. Des déformations stables de grand rapport d'aspect sont obtenues à plus grande puissance. Selon le sens de propagation du

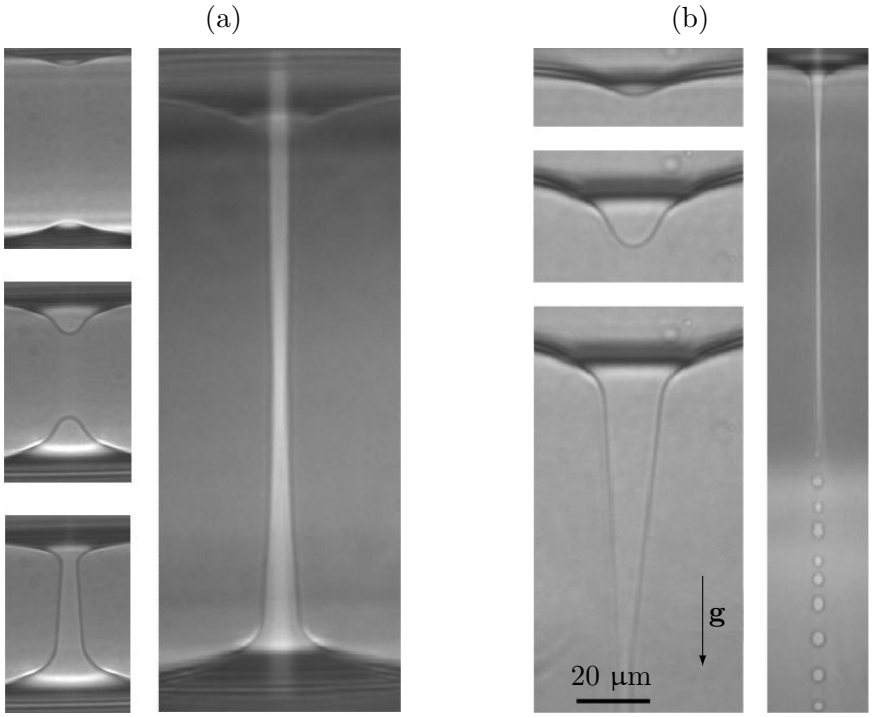

Fig. 1.18 – *Déformations de grande amplitude induites par la pression de radiation.* (a) *Formation d'un pont liquide* [128] *: l'onde laser arrivant par le bas déforme deux interfaces vers le milieu dont l'indice de réfraction est le plus petit (couche centrale). L'amplitude des déformations augmente avec la puissance laser (photos de gauche), jusqu'à la formation du pont. Au repos, les deux interfaces sont distantes de* 100 µm *sur les photos de gauche,* 200 µm *sur la photo de droite.* (b) *Formation d'un jet* [129] *: le laser arrivant par le haut déforme l'interface. La déformation croît avec la puissance laser (photos de gauche), conduisant au-delà d'un seuil à la formation d'une colonne liquide de grand rapport d'aspect émettant des gouttes à son extrémité (photo de droite).*

faisceau, des colonnes (figure 1.18 (b)) [129] ou des déformations en forme de tétine [130] sont obtenues. Le fluide s'écoule à l'intérieur de ces déformations, qui peuvent donc être considérées comme des « canaux à parois liquides ». Un écoulement du fluide externe est également induit en volume [131]. Les déformations d'interfaces par la pression de radiation optique sont encore largement étudiées au sein du laboratoire, dans le cadre notamment de la thèse de Julien Petit. Les récents travaux de thèse de Bruno Issenmann [132] et Nicolas Bertin ont également montré l'existence d'effets similaires avec des ondes acoustiques. Néanmoins, en dépit de quelques réalisations prometteuses [133], les applications des ondes acoustiques à la microfluidique demeurent peu nombreuses.

Du fait de leurs avantages spécifiques — précision, reconfigurabilité, absence de contact, absence de microfabrication dédiée —, les forces optiques constituent une approche séduisante pour manipuler des écoulements microfluidiques. Néanmoins, compte tenu de la faible amplitude de la pression de radiation optique, ni la manipulation directe d'interfaces ni les micromachines optiques ne semblent raisonnablement utilisables dans le cadre d'applications réelles. Les débits obtenus avec des pompes optofluidiques sont en effet de l'ordre de la centaine de $\mathrm{fL \cdot min^{-1}}$ pour des puissances laser de l'ordre du watt, correspondant à des vitesses d'écoulement de l'ordre de quelques $\mathrm{\mu m \cdot s^{-1}}$, lorsque les vitesses usuelles dans le cadre d'applications microfluidiques sont typiquement 3 à 4 ordres de grandeur plus élevées. Aussi le rêve de Glückstad [134] de réaliser toutes les fonctions microfluidiques avec de la lumière semble peu réalisable. Cependant, une approche basée sur une force de plus grande amplitude, non plus optique mais induite

optiquement, pourrait rendre possible cette idée.

Ainsi, l'utilisation d'un effet interfacial induit optiquement, particulièrement pertinente dans le cadre d'écoulements diphasiques à petite échelle, pourrait associer les avantages spécifiques à l'optique à une approche compatible avec les applications microfluidiques. Parmi les effets interfaciaux, le plus simple à mettre en œuvre optiquement, et qui conserve tous les atouts de la voie optique, est l'effet Marangoni thermique engendré par un chauffage laser. Ce choix peut se justifier par l'argument d'échelle suivant. L'impulsion d'un photon étant égale à son énergie divisée par c, la quantité de mouvement susceptible d'être communiquée à un objet est petite à énergie de photon donnée. Un transfert d'énergie — par échauffement — paraît donc plus favorable qu'un transfert de quantité de mouvement — par pression de radiation — pour engendrer des effets mécaniques.

Chapitre 2

Effet Marangoni

L'effet Marangoni, présenté succinctement à la section 1.2.4, a été décrit pour la première fois par le physicien italien Carlo Marangoni dans les années 1870 [135]. Cet effet peut aisément être visualisé dans la vie courante à travers le phénomène dit des « larmes de vin ». Le vin contenu dans un verre, comme tout liquide mouillant, dépose un film de mouillage qui s'élève spontanément sur les parois. L'éthanol s'évaporant préférentiellement en haut du film, un gradient de concentration vertical apparaît. Comme la tension de surface de l'éthanol est plus petite que celle de l'eau, cela se traduit par un gradient de tension de surface dirigé vers le haut. Le film est ainsi tiré vers le haut, formant un bourrelet qui retombe par gravité, comme une larme.

L'effet Marangoni, on l'a vu, a pour origine un gradient tangentiel de tension interfaciale, qui peut être dû à une inhomogénéité de la chimie interfaciale — on parle alors d'effet solutocapillaire [1] — ou à un gradient de température — effet thermocapillaire. Il a été principalement étudié sur des interfaces sphériques (des gouttes ou des bulles immergées) ou planes (des films). Dans ce chapitre, nous présentons ces deux configurations, essentiellement à travers l'effet thermocapillaire, et décrivons comment certains paramètres physiques pertinents peuvent influer sur ces effets. En particulier, l'influence du confinement et celle de la présence de tensioactifs seront discutées.

2.1 Migration de gouttes et de bulles

2.1.1 Cas des fluides purs en milieu infini

La première démonstration de la migration thermocapillaire de bulles dans un environnement fluide a été faite par Young et coll. en 1959 [136]. Dans une telle configuration, une bulle soumise à la seule poussée d'Archimède migre vers le haut au sein du fluide visqueux à une vitesse $\mathbf{u}_A$ déterminée théoriquement par Hadamard [137] et Rybczynski [138]. Un gradient de température vertical orienté vers le bas induit un gradient de tension de surface $\boldsymbol{\nabla}\sigma$ en sens contraire ; l'écoulement interfacial qui en résulte conduit à un déplacement de la bulle vers le bas (figure 2.1).

De plus, à cet effet thermocapillaire s'ajoute un autre effet d'origine thermique. Comme la masse volumique est fonction (décroissante) de la température, un mouvement de convection thermique des zones chaudes vers les zones froides peut être observé quand un fluide est soumis à un gradient de température. Nous verrons par la suite que cet effet est négligeable aux échelles caractéristiques de la microfluidique.

En régime stationnaire, la vitesse de migration de la bulle, issue de la superposition de la

1. Les « larmes de vin » entrent dans cette catégorie.

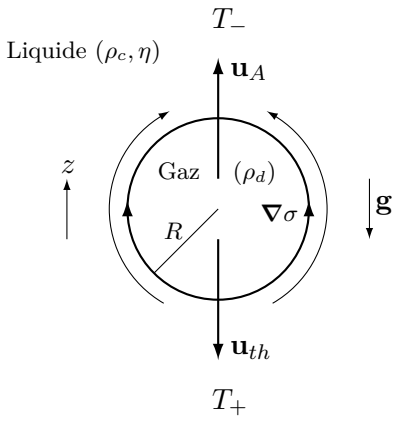

FIG. 2.1 – *Schéma de principe de l'expérience de Young et coll.* [136] *démontrant la migration thermocapillaire de bulles dans un liquide visqueux soumis à un gradient de température vertical.*

poussée d'Archimède et de l'effet thermocapillaire, s'écrit [136]

$$u_z = \frac{1}{\eta}\left(\frac{1}{3}R^2\left(\rho_c - \rho_d\right)g - \frac{1}{2}R\frac{\partial\sigma}{\partial T}\frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}z}\right) \tag{2.1}$$

avec les notations définies sur la figure 2.1. Comme au chapitre précédent, l'indice c désigne la phase continue et l'indice d la phase dispersée — ici la bulle. La contribution de cette vitesse due à l'effet thermocapillaire, nommée vitesse thermocapillaire et notée $\mathbf{u}_{th}$, vérifie alors

$$\mathbf{u}_{th} = -\frac{R}{2\eta}\frac{\partial\sigma}{\partial T}\boldsymbol{\nabla}T. \tag{2.2}$$

D'après la relation (2.1), la vitesse de migration de la bulle est la somme d'une contribution issue d'un effet volumique et d'une contribution issue d'un effet surfacique. Cette dernière contribution est, en général, petite. Plusieurs stratégies ont été proposées pour la rendre observable :

- travailler avec des bulles ou des gouttes de petit rayon : les effets surfaciques dominent alors les effets volumiques ;
- travailler en microgravité : $g \simeq 0$;
- utiliser un couple de fluides de masses volumiques très proches : $\rho_c - \rho_d \simeq 0$ (configuration dite de Plateau).

L'expérience de Young et coll. (qui repose sur la première méthode) a ainsi été généralisée trente ans plus tard à deux liquides denses, visqueux et conducteurs thermiques [139,140]. L'expression de la vitesse thermocapillaire, déjà prédite par Young, s'écrit alors

$$\mathbf{u}_{th} = -\frac{2}{2\eta_c + 3\eta_d}\frac{R}{2 + \frac{\Lambda_d}{\Lambda_c}}\frac{\partial\sigma}{\partial T}\boldsymbol{\nabla}T \tag{2.3}$$

avec $\Lambda_{c,d}$ les conductivités thermiques des deux phases. Des vitesses thermocapillaires de l'ordre du $\mathrm{mm}\cdot\mathrm{s}^{-1}$ sont mesurées pour des gouttes de rayon (sub)millimétrique dans un gradient de température de l'ordre du $\mathrm{K}\cdot\mathrm{cm}^{-1}$. Les mesures présentent cependant un désaccord quantitatif avec l'expression (2.3) : ce désaccord est attribué à un transfert convectif de la chaleur, ou à la présence d'impuretés en surface.

2.1.2 Influence de la présence de tensioactifs

Barton et Subramanian ont observé expérimentalement qu'en ajoutant une quantité contrôlée de tensioactif (le Triton X-100 ou poly-éthylèneglycol) dans les deux phases, le gradient de température nécessaire pour compenser la migration due à la poussée d'Archimède augmente [140].

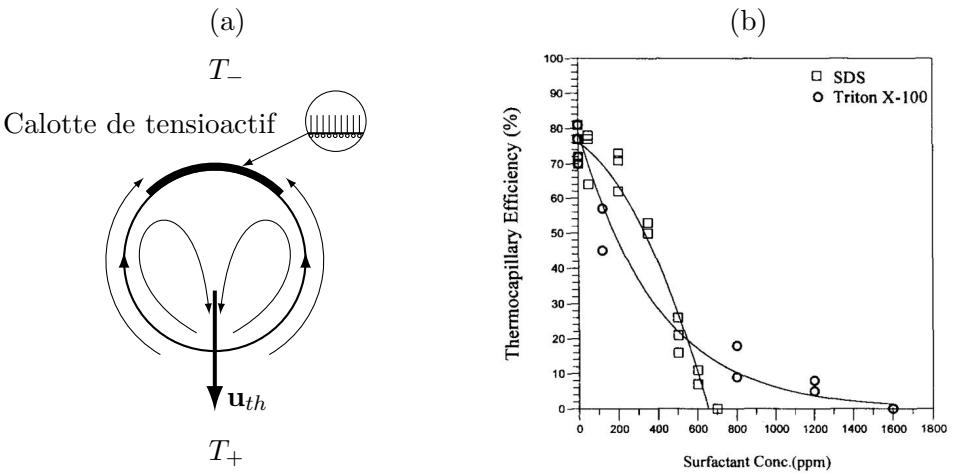

Fig. 2.2 – (a) *Représentation schématique du modèle de la calotte de tensioactif stagnante proposé dans la référence* [141]. (b) *Évolution de l'efficacité thermocapillaire avec la concentration en tensioactif de la goutte, mesurée pour deux tensioactifs dans la référence* [143]. *L'efficacité thermocapillaire est définie comme le gradient de température nécessaire pour équilibrer la gravité apparente d'une goutte de rayon donné rapporté au gradient de température correspondant prédit par la théorie de Young et coll. en fluides purs. L'écart à la théorie observé à concentration nulle est attribué à la présence de traces d'impuretés ou à un transfert convectif de la chaleur.*

Kim et Subramanian ont proposé un modèle pour décrire théoriquement cette atténuation de l'effet thermocapillaire [141, 142]. Ce modèle considère le cas de tensioactifs insolubles dans la phase continue et néglige toute diffusion en volume. Les mécanismes de transport du tensioactif sont alors l'advection et la diffusion sur l'interface, dont le rapport définit un nombre sans dimension, le nombre de Péclet interfacial $\mathrm{Pé}_{\|}$. Dans la limite d'un transport interfacial diffusif négligeable [141], $\mathrm{Pé}_{\|} \to \infty$, l'advection conduit à la formation d'une « calotte » de tensioactif *(surfactant cap)* au voisinage du point de stagnation arrière de la goutte (figure 2.2 (a)). Cette calotte inhibe tout mouvement de l'interface, diminuant l'efficacité de la migration thermocapillaire, jusqu'à sa suppression totale lorsque l'extension de la calotte couvre toute la goutte. Si le tensioactif peut diffuser sur l'interface [142], la concentration surfacique en tensioactif, dont dépend la vitesse de l'interface, devient elle-même dépendante de la vitesse interfaciale. Le problème s'écrit alors sous forme d'une équation différentielle non linéaire, qui ne peut être résolue analytiquement que dans le cas asymptotique d'un transport purement diffusif du tensioactif, ou le cas contraire, purement advectif, qui correspond au modèle de la calotte de tensioactif. La diffusion du tensioactif tend à homogénéiser sa concentration. Par conséquent, lorsque l'advection est complètement négligeable devant la diffusion ($\mathrm{Pé}_{\|} \to 0$), l'effet du tensioactif est nul, conduisant à l'expression correspondant au cas des fluides purs. Un développement asymptotique au voisinage de ces deux limites montre ainsi :

- à faible advection ($\mathrm{Pé}_{\|} \ll 1$), une vitesse thermocapillaire plus petite que celle correspondant au cas des fluides purs mais qui tend vers cette limite ;
- à faible diffusion ($\mathrm{Pé}_{\|} \gg 1$), une vitesse thermocapillaire qui tend vers zéro : le seul mouvement possible dans la limite d'une interface rigide est celui imposé par une force en volume (la vitesse de migration correspondante est alors celle d'un objet solide).

L'effet de l'élasticité de l'interface est également présenté dans la limite des faibles élasticités. Cet effet tend aussi à diminuer la vitesse thermocapillaire.

Une étude expérimentale [143], menée pour deux tensioactifs solubles dans la phase dispersée (le Triton X-100 et le sodium dodécylsulfate, SDS) en concentration variable, confirme la tendance prédite : la vitesse thermocapillaire décroît lorsque la concentration en tensioactif augmente, et s'annule totalement pour une concentration critique (figure 2.2 (b)). Cette concen-

tration critique est du même ordre de grandeur que la concentration micellaire critique (CMC) de ces tensioactifs, qui correspond à la concentration volumique pour laquelle intervient la saturation de l'interface. En dépit des limites de cette définition, qui décrit un phénomène surfacique à partir d'une grandeur volumique, cet accord d'ordre de grandeur semble accréditer le modèle de la calotte stagnante de Kim et Subramanian.

Un autre article théorique traite ce problème en tenant compte des comportements interfaciaux hors d'équilibre [144]. Le saut de contrainte tangentielle (membre de droite de l'équation (1.27)) est ainsi la somme

- d'un terme de traction Marangoni, la tension interfaciale dépendant de la température et de la densité interfaciale de molécules de tensioactif, Γ ;
- d'une contrainte due à la viscosité de cisaillement interfaciale ;
- d'une contrainte due à la viscosité dilatationnelle interfaciale,

ces deux dernières étant définies en présence d'un écoulement de tensioactif à l'interface. Elles traduisent la résistance opposée par le film liquide représenté par l'interface respectivement à son écoulement et à sa dilatation. Le saut de contrainte normale (membre de droite de l'équation (1.26)) est la somme de la pression de Laplace et d'une contrainte de dilatation, faisant intervenir la viscosité dilatationnelle interfaciale. La distribution du tensioactif sur l'interface est supposée pilotée par l'advection et par la diffusion sur l'interface : les échanges de matière avec chaque phase sont, comme dans les modèles précédents, négligés. De même, les transferts thermiques sont dus à la convection et à la conduction médiée par diffusion du tensioactif. Enfin, le modèle se place dans l'approximation de faibles gradients, dans laquelle le gradient de tension interfaciale s'écrit sous forme linéarisée, en notant ϕ l'angle polaire et Γ_0 la concentration interfaciale à l'équilibre :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \phi} = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\Gamma=\Gamma_0} \frac{\partial T}{\partial \phi} + \frac{\Gamma}{\Gamma_0} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Gamma}\right)_{\Gamma=\Gamma_0} \frac{\partial \Gamma}{\partial \phi}. \tag{2.4}$$

Le résultat du calcul peut s'écrire sous une forme analogue à l'expression (2.3)

$$\mathbf{u}_{th} = -\frac{1}{\Psi} \frac{R}{\eta_c \left(2 + \frac{\Lambda_d}{\Lambda_c}\right)} \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\mathit{eff}} \boldsymbol{\nabla} T \tag{2.5}$$

en faisant apparaître un « $\frac{\partial \sigma}{\partial T}$ effectif »

$$\left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\mathit{eff}} = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\Gamma} + \frac{\left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Gamma}\right)_T}{\left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Gamma^2}\right)_T} \left(\frac{1}{T}\left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Gamma}\right)_T - \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Gamma \partial T}\right) \tag{2.6}$$

et un facteur d'amplitude $\frac{1}{\Psi}$ tel que

$$\Psi = 1 + \frac{3}{2}\frac{\eta_d}{\eta_c} + \frac{\eta'}{\eta_c R} + \frac{1}{2}\frac{E_0 R}{\eta_c D^{\parallel}_{\mathit{eff}}} + \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\mathit{eff}} \frac{c^{\parallel}_{\mathit{eff}}}{\Lambda_c \eta_c \left(2 + \frac{\Lambda_d}{\Lambda_c}\right)}, \tag{2.7}$$

où η' est la viscosité dilatationnelle interfaciale et $E_0 = -\Gamma \left(\frac{\partial \sigma}{\partial \Gamma}\right)_{\Gamma=\Gamma_0}$ l'élasticité de Gibbs de l'interface. Des termes effectifs pour la diffusivité interfaciale $D^{\parallel}$ et la chaleur spécifique interfaciale $c^{\parallel}$, qui traduisent les transferts de matière et de chaleur sur l'interface, apparaissent également :

$$D^{\parallel}_{\mathit{eff}} = D^{\parallel} \frac{\Gamma}{\Re T} \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Gamma^2}\right)_T \tag{2.8}$$

$$c^{\parallel}_{\mathit{eff}} = T \left(\left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\Gamma} - \Gamma \frac{\partial^2 \sigma}{\partial T \partial \Gamma}\right), \tag{2.9}$$

avec $\mathfrak{R}$ la constante des gaz parfaits.

La couplage entre les variables température et concentration en tensioactif conduit donc à un coefficient de variation de tension interfaciale effectif. Ce coefficient peut *a priori* être positif ou négatif, dictant ainsi un sens de migration de la goutte qui peut être opposé au sens observé avec des fluides purs. Par ailleurs, la réduction de la vitesse de migration imposée par les propriétés rhéologiques de l'interface s'accorde avec les résultats théoriques et expérimentaux relatés dans la littérature.

2.1.3 Influence du confinement

On l'a vu, l'une des difficultés pour étudier expérimentalement l'effet thermocapillaire consiste à s'affranchir de la gravité. Une alternative aux stratégies proposées plus haut consiste à créer un gradient de température horizontal afin de découpler les effets. Cette approche trouve sa pertinence notamment dans le cas des bulles, présentant un fort contraste de densité avec le fluide environnant. Le système est alors contraint par des parois horizontales qui modifient les conditions d'écoulement. Néanmoins, la phase dispersée étant non mouillante, elle est entourée d'un film liquide, qui permet l'existence d'un terme de traction de l'interface $\boldsymbol{\nabla}_{\parallel}\sigma$. L'effet étudié est donc bien de type Marangoni, se distinguant ainsi des travaux mettant en jeu des gouttes ou des bulles mouillantes [71–75].

En configuration de Hele-Shaw, trois comportements, représentés sur la figure 2.3, ont été identifiés selon le rayon R de bulles non mouillantes [145, 146]. Lorsque le diamètre de la bulle est plus petit que l'épaisseur h de la cellule, $2R \ll h$, elle conserve une forme sphérique et la vitesse thermocapillaire se comporte en accord qualitatif avec l'expression (2.2), l'écart au niveau quantitatif étant attribué au frottement de la bulle sur l'une des parois. Si le diamètre de la bulle est grand devant l'épaisseur de la cellule, $2R \gg h$, la bulle est aplatie en forme de disque. L'écoulement du fluide environnant n'est envisagé qu'à travers le film de mouillage qui sépare la bulle de chaque paroi. La vitesse thermocapillaire est alors proportionnelle au rayon de la bulle mais se trouve réduite d'un facteur d'amplitude. Dans le cas intermédiaire, où le diamètre de la bulle est comparable à l'épaisseur de la cellule ($2R \sim h$), la force de friction croît avec le rayon de la bulle, conduisant à une vitesse thermocapillaire qui diminue à taille de bulle croissante.

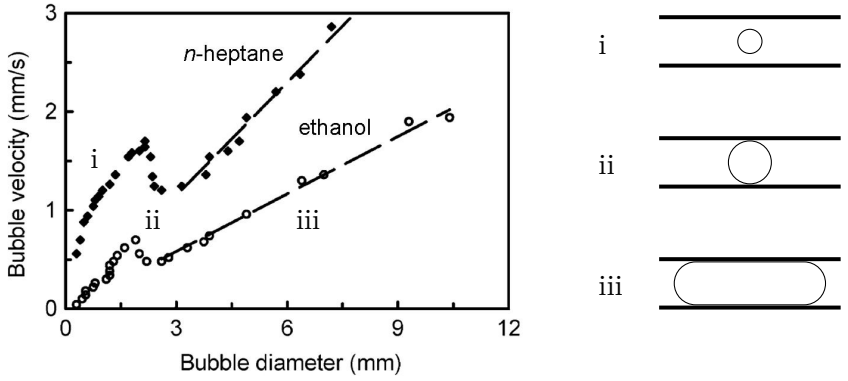

Fig. 2.3 – *Vitesse de migration thermocapillaire de bulles dans un gradient de température horizontal en configuration de Hele-Shaw. La phase continue est de l'éthanol ou de l'heptane, de viscosités respectives* 1,2 *et* 0,4 mPa · s *à* 20 ℃. *La cellule a une hauteur* $h = 2$ mm. *Tiré de* [146].

Dans une série de trois articles, Mazouchi et Homsy [147, 148] et Lajeunesse et Homsy [149] ont étudié théoriquement et expérimentalement la migration de bulles allongées dans des capillaires cylindriques ou polygonaux. La bulle est divisée en 5 régions : les deux ménisques, où la courbure est imposée par la force capillaire ; la partie centrale de la bulle, séparée des parois par le film de mouillage d'épaisseur homogène ; et deux régions de transition entre les ménisques et

le centre, où l'épaisseur du film varie. La vitesse thermocapillaire, calculée à partir du flux de liquide dans les films de mouillage, fait intervenir une longueur caractéristique ℓ qui dépend de la géométrie.

Pour un capillaire cylindrique [147], ℓ est le rayon du capillaire. La vitesse thermocapillaire dépend de $\frac{\ell}{\eta}\frac{\partial\sigma}{\partial T}\boldsymbol{\nabla}T$ de façon non linéaire, du fait de la non-linéarité de la dynamique des fluides dans les zones de transition.

Dans le cas d'un capillaire polygonal [148], la présence de coins facilite l'écoulement du fluide extérieur. La vitesse thermocapillaire est alors linéaire en $\frac{\ell}{\eta}\frac{\partial\sigma}{\partial T}\boldsymbol{\nabla}T$, la prise en compte de l'écoulement dans les films de mouillage induisant par ailleurs une correction non linéaire. Cette correction apparaît prépondérante lorsque le nombre de faces augmente, le cas limite d'une infinité de faces correspondant à un capillaire cylindrique. La longueur caractéristique ℓ est celle qui impose sa courbure transverse κ à la bulle, c'est-à-dire la demi-arête du polygone.

Lorsque le canal a une section rectangulaire $w\times h$, la correction non linéaire peut être négligée devant l'écoulement dans les coins. La vitesse thermocapillaire de la bulle s'écrit ainsi

$$\mathbf{u}_{th} = -\xi\frac{h}{2\eta}\frac{\partial\sigma}{\partial T}\boldsymbol{\nabla}T \tag{2.10}$$

avec ξ un terme d'amplitude adimensionné décrivant l'écoulement dans les coins,

$$\xi = \frac{0{,}014}{\tilde{\kappa}^3}\left(\varphi - \frac{1-\frac{\pi}{4}}{\tilde{\kappa}^2}\right)^{-1}, \tag{2.11}$$

qui dépend du rapport d'aspect du capillaire, $\varphi = \frac{w}{h}$, et de la courbure adimensionnée de la bulle, $\tilde{\kappa} = \kappa\ell = \kappa\frac{h}{2}$. Compte tenu de l'existence des parois latérales qui influent sur la forme du ménisque, la courbure dépend du rapport d'aspect du capillaire :

$$\tilde{\kappa} = \frac{\varphi + 1 + \sqrt{(\varphi-1)^2 + \varphi\pi}}{2\varphi}. \tag{2.12}$$

La vitesse thermocapillaire varie donc de manière non monotone avec le rapport d'aspect, atteignant un maximum pour $\varphi = 1{,}808$ comme le montre la figure 2.4.

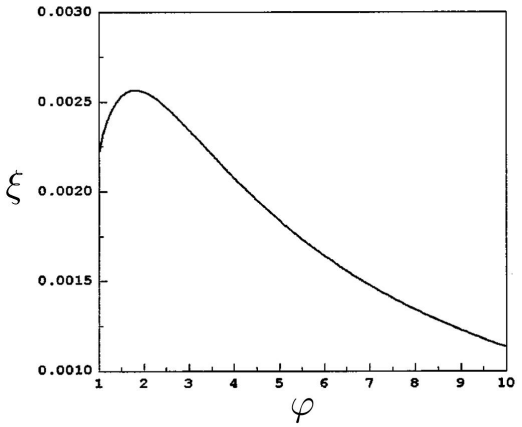

FIG. 2.4 – *Variation du terme adimensionné ξ corrigeant l'amplitude de la vitesse thermocapillaire d'une bulle allongée dans un capillaire rectangulaire en fonction de son rapport d'aspect φ* [148].

Ce comportement a été vérifié expérimentalement dans le cas d'un capillaire rectangulaire horizontal [149]. La vitesse thermocapillaire des bulles est indépendante de leur taille lorsqu'elle dépasse environ $5h$, et varie linéairement avec $\frac{\ell}{\eta}\frac{\partial\sigma}{\partial T}\boldsymbol{\nabla}T$ lorsque l'effet de la gravité est négligeable. La vitesse thermocapillaire des bulles plus petites, non décrites par la théorie de Mazouchi et Homsy [147,148], augmente avec leur taille, en accord avec les observations faites en configuration de Hele-Shaw (figure 2.3 et références [145, 146]).

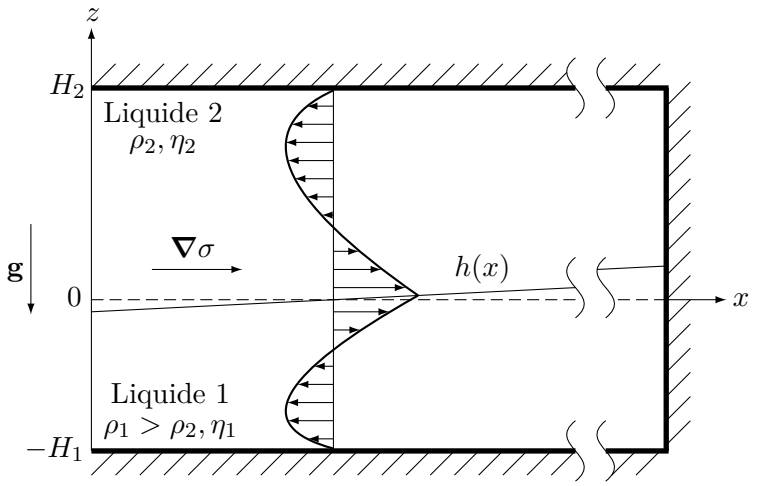

FIG. 2.5 – *Profil de vitesse au sein d'un système de deux couches liquides d'épaisseurs H_1 et H_2 soumises à un gradient de tension interfaciale.*

2.2 Déformations d'interfaces

Considérons un système constitué de deux couches liquides horizontales superposées, de longueur bornée, de largeur infinie et d'épaisseurs respectives H_1 et H_2, comme représenté sur la figure 2.5, soumis à une contrainte Marangoni qui résulte d'un gradient horizontal de tension interfaciale $\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x}$. Dans une telle configuration, l'effet Marangoni induit une déformation de l'interface. Le calcul qui suit s'inspire d'un cas traité dans la référence [42].

2.2.1 Déformation thermocapillaire

On considère l'écoulement suffisamment loin de la paroi verticale, ce qui permet de se placer dans le cadre de l'approximation de lubrification, où l'écoulement est unidirectionnel suivant l'axe x. La condition d'incompressibilité (1.3) conduit alors à un champ de vitesse qui ne dépend que de z, avec la condition de non glissement aux parois

$$\begin{cases} u_{x,1}\left(z=-H_1\right)=0 & \text{liquide 1,} \\ u_{x,2}\left(z=H_2\right)=0 & \text{liquide 2.} \end{cases} \tag{2.13}$$

L'existence d'une paroi verticale impose en outre la nullité du débit dans chaque phase

$$\begin{cases} \int_{-H_1}^{0} u_{x,1}\left(z\right)\mathrm{d}z=0 & \text{liquide 1,} \\ \int_{0}^{H_2} u_{x,2}\left(z\right)\mathrm{d}z=0 & \text{liquide 2.} \end{cases} \tag{2.14}$$

Enfin, la continuité des vitesses à l'interface impose une troisième condition aux limites :

$$u_{x,1}\left(z=0\right)=u_{x,2}\left(z=0\right). \tag{2.15}$$

L'écoulement est décrit par l'équation de Stokes (1.10), qui à l'état stationnaire s'écrit dans les deux liquides ($i=1,2$),

$$-\boldsymbol{\nabla}p_i+\eta_i\nabla^2\mathbf{u}_i+\rho_i\mathbf{g}=\mathbf{0}, \tag{2.16}$$

soit, après projection sur les axes x et z,

$$\frac{\partial p_i}{\partial x}=\eta_i\frac{\mathrm{d}^2u_{x,i}}{\mathrm{d}z^2} \tag{2.17}$$

$$\frac{\partial p_i}{\partial z}=-\rho_i g. \tag{2.18}$$

Le champ de pression, dont la dépendance verticale est imposée par la pression hydrostatique (éq. (2.18)), s'écrit alors

$$\begin{aligned} p_1(x,z) &= p_\parallel(x) + \rho_1 g\left(z_\parallel - z\right) \\ p_2(x,z) &= p_0(x) + \rho_2 g\left(H_2 - z\right) \end{aligned} \tag{2.19}$$

avec $p_\parallel$ la pression à l'interface — à la cote $z_\parallel = 0$ au repos — et $p_0(x)$ la pression au niveau de la paroi supérieure, inconnue *a priori*.

L'équilibre des contraintes tangentielles (éq. (1.27)), qui s'écrit ici

$$\eta_1 \left(\frac{\partial u_{x,1}}{\partial z}\right)_{z=z_\parallel} - \eta_2 \left(\frac{\partial u_{x,2}}{\partial z}\right)_{z=z_\parallel} = \frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x}, \tag{2.20}$$

montre que le terme de traction de l'interface induit un écoulement de type cisaillement simple qui draine du fluide parallèlement à l'interface. Cet apport de fluide conduit à une élévation de l'interface, $h(x)$, et par suite à un gradient de pression horizontal :

$$\begin{aligned} \frac{\partial p_1}{\partial x} &= \frac{\partial p_0}{\partial x} + (\rho_1 - \rho_2)\, g \frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x} \\ \frac{\partial p_2}{\partial x} &= \frac{\partial p_0}{\partial x}. \end{aligned} \tag{2.21}$$

Par deux intégrations successives de l'équation du mouvement suivant l'axe x (expression (2.17)), on obtient l'expression générale des champs de vitesse ($i = 1, 2$),

$$u_{x,i}(z) = \frac{1}{2\eta_i}\frac{\partial p_i}{\partial x} z^2 + A_i z + B_i, \tag{2.22}$$

avec A_i et B_i des constantes d'intégration. Les conditions (2.13) et (2.14) imposent

$$A_1 = \frac{2H_1}{3\eta_1}\frac{\partial p_1}{\partial x}, \quad A_2 = -\frac{2H_2}{3\eta_2}\frac{\partial p_2}{\partial x}, \tag{2.23}$$

$$B_1 = \frac{H_1^2}{6\eta_1}\frac{\partial p_1}{\partial x}, \quad B_2 = \frac{H_2^2}{6\eta_2}\frac{\partial p_2}{\partial x}\ ; \tag{2.24}$$

par ailleurs la continuité des vitesses à l'interface (2.15) impose $B_1 = B_2$, d'où, compte tenu de (2.21),

$$\frac{\partial p_0}{\partial x} = \eta_2 g H_1^2 \frac{\rho_1 - \rho_2}{\eta_1 H_2^2 - \eta_2 H_1^2}\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x}. \tag{2.25}$$

On peut ainsi écrire les champs de vitesse :

$$\begin{aligned} u_{x,1}(z) &= g H_2^2 \frac{\rho_1 - \rho_2}{\eta_1 H_2^2 - \eta_2 H_1^2}\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x}\left(\frac{z^2}{2} + \frac{2}{3}H_1 z + \frac{H_1^2}{6}\right) \\ u_{x,2}(z) &= g H_1^2 \frac{\rho_1 - \rho_2}{\eta_1 H_2^2 - \eta_2 H_1^2}\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x}\left(\frac{z^2}{2} - \frac{2}{3}H_2 z + \frac{H_2^2}{6}\right). \end{aligned} \tag{2.26}$$

L'écoulement total, représenté sur la figure 2.5, est la somme d'un écoulement de cisaillement simple induit à l'interface par la contrainte Marangoni, et d'une recirculation en profondeur provoquée par le gradient de pression horizontal qui résulte de l'accumulation de fluide dans une zone confinée. Lorsque le film n'est pas contraint horizontalement, la condition de nullité du débit (2.14) n'existe pas : seul l'écoulement de cisaillement existe. Le film — ou la goutte, dans le cas d'une goutte mouillante déposée sur le substrat — est alors déplacé dans son ensemble [76–79].

Si l'élévation de hauteur est suffisamment petite pour que la contrainte Marangoni soit toujours considérée comme purement selon l'axe x, on peut utiliser (2.20) en $z_{\|} \simeq 0$ pour obtenir

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x} = \frac{3}{2\left(\rho_1 - \rho_2\right) g} \frac{\eta_1 H_2^2 - \eta_2 H_1^2}{\eta_1 H_1 H_2^2 + \eta_2 H_2 H_1^2} \frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x}. \tag{2.27}$$

On voit ainsi que l'effet Marangoni conduit à une déformation de l'interface. Le sens de cette déformation est imposé par un couplage entre les différences de viscosité et d'épaisseur de chaque couche liquide, et par le sens du gradient de tension interfaciale. Dans le cas où les épaisseurs sont identiques, $H_1 = H_2 = H$, la déformation de l'interface, qui s'écrit

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x} = \frac{3}{2\left(\rho_1 - \rho_2\right) g H} \frac{\eta_1 - \eta_2}{\eta_1 + \eta_2} \frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x}, \tag{2.28}$$

est orientée dans le sens des viscosités décroissantes lorsque la tension interfaciale est plus grande à la paroi. Par ailleurs, son amplitude est pilotée par un équilibre entre effet Marangoni — moteur de la déformation — et gravité — moteur du contre-écoulement.

De telles déformations d'interfaces, induites par chauffage laser, ont fait l'objet d'une littérature abondante. Dans ce cas, le gradient de tension de surface est imposé par un champ de température à symétrie radiale. La déplétion (ou l'accumulation) de fluide au niveau du spot laser conduit bien à une condition de débit nul (2.14) même en l'absence de paroi. Ces travaux s'inscrivent dans des contextes aussi divers que des dispositifs d'imagerie (lentilles thermiques [150–153]), l'étude du soudage par laser [154–156] ou l'excitation d'ondes capillaires [157]. Une étude [158] a par ailleurs montré que, de façon analogue à la migration thermocapillaire de gouttes, les déformations d'interfaces ainsi réalisées sont atténuées en présence de tensioactifs.

2.2.2 Déformation thermogravitaire

Lorsque la contrainte Marangoni est due à un gradient horizontal de température, soit $\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x} = \left(\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}T}\right)_{T=T_0} \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x}$ en considérant une variation dans l'approximation linéaire, un autre effet intervient, qui a été jusqu'ici ignoré. Dans la suite, on simplifie le problème précédent au cas d'une surface libre : $\rho_2, \eta_2 = 0$ et $p_0(x) = p_{atm}$ est la pression atmosphérique ; l'indice 1 est omis par souci de lisibilité.

La masse volumique dépend de la température, $\rho\left(T\right) = \rho_0 + \left(\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T}\right)_{T=T_0} \left(T - T_0\right)$ avec ρ_0 sa valeur à T_0, elle devient elle-même fonction de x :

$$\rho\left(x\right) = \rho_0 + \left(\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T}\right)_{T=T_0} \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x} x. \tag{2.29}$$

Le gradient de pression horizontal (2.21) devient alors, pour de petites variations de la masse volumique :

$$\frac{\partial p}{\partial x} \simeq \rho_0 g \frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x} + g\left(H - z\right) \left(\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T}\right)_{T=T_0} \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x} \tag{2.30}$$

et le même raisonnement que précédemment conduit à

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x} = \left(\frac{3}{2\rho_0 g H} \left(\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}T}\right)_{T=T_0} - \frac{3}{8\rho_0} \left(\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T}\right)_{T=T_0} H \right) \frac{\mathrm{d}T}{\mathrm{d}x}. \tag{2.31}$$

Les termes $\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}T}$ et $\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T}$ étant tous deux négatifs (dans le cas général), on voit ainsi que les dépendances en température de la tension de surface et de la masse volumique conduisent à des effets antagonistes. L'effet lié à la masse volumique, appelé effet thermogravitaire, induit une élévation du niveau des zones chaudes, à l'inverse de l'effet thermocapillaire. Cet effet augmente

linéairement avec la hauteur du film. On peut ainsi montrer que l'effet thermocapillaire est prépondérant pour des hauteurs

$$H < 2\sqrt{\frac{\left|\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}T}\right|}{\left|\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T}\right| g}} \tag{2.32}$$

de l'ordre de quelques mm pour les fluides usuels. Ainsi, dans le cadre d'écoulements microfluidiques, l'effet thermocapillaire est prépondérant et l'effet thermogravitaire est toujours négligé.

Dans ce chapitre, nous avons montré que l'effet Marangoni constitue un moyen robuste de manipuler des fluides à petite échelle, démontrant sa pertinence dans le cadre d'une application microfluidique. Par ailleurs, il est très facile d'induire un tel effet par une voie purement optique, en créant un gradient de température par chauffage laser : une telle approche conserve ainsi les avantages des méthodes optiques. Dans les chapitres suivants, nous présenterons la mise en œuvre expérimentale de cette méthode, et présenterons les résultats obtenus au cours de cette thèse.

Chapitre 3

Techniques expérimentales

Nous avons montré au chapitre précédent les effets induits par l'échauffement d'une interface entre deux fluides non miscibles. Ces effets ont été présentés dans le cas le plus général où l'effet est induit par un gradient de température macroscopique en milieu infini. Dans cette partie, nous présentons un dispositif permettant de produire cet effet avec un gradient de température localisé, induit optiquement, dans l'environnement confiné d'un microcanal.

3.1 Fluides utilisés

L'observation d'un effet thermocapillaire suppose l'existence d'une interface entre deux phases distinctes, soit un liquide et un gaz, soit deux liquides non miscibles. Nous utilisons donc une phase aqueuse et une phase organique, constituée d'hexadécane (Aldrich ou Acros Organics), couple de fluides classiquement utilisé en microfluidique. Le tableau 3.1 résume les valeurs des grandeurs physiques pertinentes de ces deux liquides à température ambiante.

Tab. 3.1 – *Caractéristiques de l'eau et de l'hexadécane* à 20 ℃.

	Eau	Hexadécane	
Masse volumique ρ	998	773	$\mathrm{g \cdot cm^{-3}}$
Viscosité dynamique η	0,97	3,34	$\mathrm{mPa \cdot s}$
Conductivité thermique Λ	0,6	0,14	$\mathrm{W \cdot K^{-1} \cdot m^{-1}}$
Diffusivité thermique D_T	1,4	0,9	$10^{-7}\ \mathrm{m^2 \cdot s^{-1}}$
Indice de réfraction n (à 589 nm)	1,33	1,43	
Tension interfaciale σ		55,2 [159]	$\mathrm{mN \cdot m^{-1}}$

3.1.1 Propriétés interfaciales

Tensioactifs

Obtenir des écoulements réguliers au sein des microcanaux suppose notamment de s'affranchir des effets liés à l'hystérésis de mouillage de la phase dispersée. On cherche donc à imposer le non-mouillage de cette dernière sur toutes les parois du canal, quels que soient les débits imposés. Des tensioactifs sont donc ajoutées à l'une des phases [160]. Ces molécules composées d'une tête polaire — hydrophile — et d'une chaîne aliphatique — hydrophobe — tendent à se grouper à l'interface entre les phases aqueuse et organique, diminuant ainsi la tension interfaciale et défavorisant le mouillage de la phase aqueuse sur les parois du microcanal.

En règle générale, le tensioactif utilisé dans les travaux décrits dans cette thèse est le Span® 80 (Sorbitan monooleate, Sigma-Aldrich), communément utilisé en microfluidique. Il est ajouté à l'hexadécane à une concentration de 2 % massique, très supérieure à la CMC (0,055 %

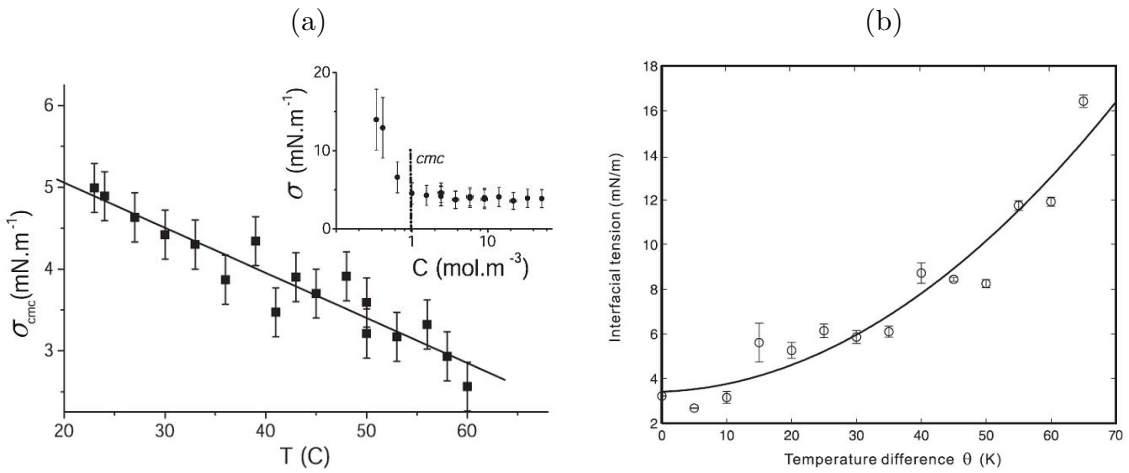

FIG. 3.1 – *Évolution de la tension interfaciale avec la température en présence de Span® 80.* (a) *Mesure sur l'interface eau-hexadécane, réalisée à* 2 % *massique (*$T = 20$ ℃ *correspond à la température ambiante). Encart : évolution de la tension interfaciale avec la concentration en tensioactif : la CMC est évaluée à* 1 $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ *soit* 0,055 % *massique. Tiré de* [161]. (b) *Mesure sur l'interface eau-huile silicone, réalisée à* 0,13 % *massique* [73].

massique). La tension interfaciale entre l'eau et l'hexadécane vaut alors $\sigma \simeq 5$ $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$ à température ambiante.

D'autres tensioactifs, le Triton X-100 et le SDS (United States Biochemical) ont également été utilisés dans certaines expériences. Ces deux tensioactifs sont ajoutés à la phase aqueuse.

Tension interfaciale

La tension interfaciale du système eau-hexadécane en présence de Span® 80 a été mesurée à différentes concentrations et températures (figure 3.1 (a) et référence [161]) à partir de la méthode de la goutte pendante [162]. La diminution de tension interfaciale due à l'ajout de tensioactif sature lorsque sa concentration atteint la CMC. Par ailleurs, la mesure montre que la tension interfaciale au-delà de la CMC diminue linéairement avec la température, conformément au comportement généralement attendu.

Cependant, une autre mesure, réalisée pour un système eau-huile silicone (PDMS à 10 cSt) en présence du même tensioactif, fournit des résultats opposés [73] : dans ce cas, la tension interfaciale croît avec l'élévation de température (figure 3.1 (b)). Si cette observation est faite sur un système différent, la phase organique utilisée dans cette étude n'est pas connue pour une quelconque propriété rhéologique de nature à expliquer une telle différence de comportement.

Par ailleurs, considérant un système diphasique eau-hexadécane statique en présence de tensioactif Span® 80 à une concentration très supérieure à la CMC, nous avons observé l'apparition d'un nuage turbide au sein de la phase organique, au bout d'un temps compris entre quelques minutes et quelques heures. Ce comportement, qui peut s'interpréter comme la formation d'une microémulsion par transfert de tensioactif au travers de l'interface, signifie que le système est hors d'équilibre. Ainsi, les mesures présentées sur la figure 3.1 (a) ne correspondent vraisemblablement pas à la tension interfaciale à l'équilibre. Notons que la turbidité de la phase organique n'est pas observée lorsqu'on remplace le Span® 80 dans l'huile par du SDS, par ailleurs connu pour son insolubilité dans les solvants organiques, dans l'eau. En outre, dans les expériences en microcanal, la phase organique demeure apparemment transparente. Ceci peut s'expliquer par le temps de contact réduit — quelques secondes — entre les deux phases, du fait de l'écoulement.

Ces deux séries de mesures ne permettent donc pas de trancher sur le signe du coefficient de variation de la tension interfaciale avec la température. En revanche, une mesure sur le système eau-SDS-hexadécane, apparemment stable, est envisageable. Durant sa thèse au sein de l'équipe,

Bruno Issenmann a développé une méthode de mesure de tension interfaciale, sans contact et thermostatable, utilisant la pression de radiation acoustique [132], qui semble séduisante dans ce contexte. Cette mesure présente néanmoins quelques contraintes expérimentales qui n'ont pas toutes été levées à ce jour.

3.1.2 Propriétés optiques

L'eau et l'hexadécane sont tous deux transparents dans le visible. L'effet étudié ayant une origine thermique, une des deux phases au moins doit absorber la lumière à la longueur d'onde utilisée. Un colorant, l'uranine, est donc dissout dans l'eau à 0,1 % massique. Une part de l'énergie absorbée est réémise par fluorescence, le reste est dissipé par voie thermique dans le milieu. L'absorption et le rendement quantique caractérisent, respectivement, le nombre de photons absorbés par unité de longueur traversée, et la proportion de photons réémis par fluorescence.

À notre connaissance, il n'existe pas de caractérisation de l'uranine dans l'eau dans la littérature. Nous avons donc mesuré ces propriétés. Ce travail a été réalisé avec Gediminas Jonusauskas, spectroscopiste moléculaire au CPMOH.

Absorption optique

L'uranine, aussi appelée fluorescéine hydrologique, se présente sous la forme d'une poudre rouge-ocre et prend une couleur jaune vif en solution aqueuse. Son spectre d'absorption est représenté sur la figure 3.2 (a). Il présente un pic autour de 490 nm qui décroît de manière abrupte à zéro vers 550 nm. L'absorbance est mesurée pour des solutions de concentration variable à la longueur d'onde du laser utilisée (514,5 nm), conduisant à une valeur du coefficient d'extinction molaire de 633,5 $\mathrm{m^2 \cdot mol^{-1}}$. Le spectre de l'uranine dans l'éthanol basique reporté dans la littérature [163] présente une allure similaire, mais le pic principal est décalé vers le rouge à 500 nm, conduisant à une valeur du coefficient d'extinction molaire très supérieure (3 432,8 $\mathrm{m^2 \cdot mol^{-1}}$) à 514,5 nm. Dans cette configuration, la molécule libère deux ions $\mathrm{Na^+}$, modifiant sa structure électronique totale, ce qui pourrait expliquer le décalage vers le rouge observé.

La loi de Beer-Lambert donne l'intensité I_{abs} absorbée par une épaisseur z de solution,

$$I_{abs} = \left(1 - \mathrm{e}^{-az}\right) I_0 \tag{3.1}$$

avec I_0 l'intensité incidente et a le coefficient d'absorption de la solution : la mesure conduit à $a = (3{,}877 \pm 0{,}021)\ \mathrm{mm^{-1}}$ pour l'uranine à 0,1 %. Une fraction χ de cette intensité absorbée est réémise dans tout l'espace sous forme de rayonnement de fluorescence, l'énergie résiduelle $I_Q = (1 - \chi)\, I_{abs}$ est convertie en chaleur. Le flux de chaleur Φ s'écrit par définition

$$\Phi = \frac{\mathrm{d}I_Q}{\mathrm{d}z} = \alpha(z) I(z) \tag{3.2}$$

avec α un « coefficient d'absorption thermique », qui décrit l'échauffement de la solution. Ce terme, appelé dans la suite « absorption » par commodité, s'écrit ainsi

$$\alpha(z) = (1 - \chi)\, a\, \mathrm{e}^{-az}. \tag{3.3}$$

Sur l'épaisseur d'un microcanal (50 µm), l'argument de l'exponentielle varie de 18 %. L'absorption ne peut donc être considérée comme constante, mais sa variation est approximativement linéaire, et on pourra considérer sa valeur moyenne comme référence :

$$\alpha \simeq 0{,}91\, (1 - \chi)\, a. \tag{3.4}$$

Le calcul du rendement quantique permet alors de déterminer α.

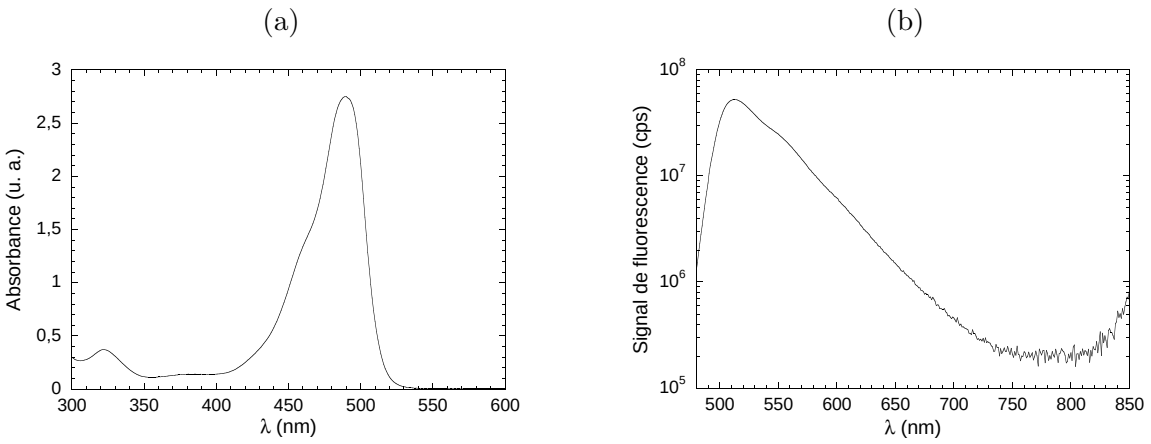

FIG. 3.2 – *Spectres* (a) *d'absorption et* (b) *de fluorescence de l'uranine dans l'eau.*

Rendement quantique de fluorescence

Le spectre de fluorescence de l'uranine en solution aqueuse diluée est mesuré, à l'aide d'un fluorimètre, pour une excitation à 490 nm, et représenté sur la figure 3.2 (b). L'intensité de fluorescence I_{fluo} est obtenue après intégration du signal sur tout le spectre et sur tout l'espace.

L'intensité de fluorescence dépend de l'absorbance de la solution considérée. En effet, une solution très diluée, ou d'épaisseur très petite, produit un signal de fluorescence très peu intense. Inversement, une solution très concentrée ou placée dans une cuve très large absorbe toute la lumière émise. Ainsi, le rendement quantique de fluorescence $\chi = \frac{I_{fluo}}{I_{abs}}$, défini indépendamment de la concentration de la solution, comporte un maximum pour une absorbance donnée. Il est déterminé à partir d'une substance de référence, dont le rendement quantique $\chi_{réf}$ est connu, selon une procédure décrite dans l'annexe B.

En utilisant comme référence la rhodamine 6G R 590 dans l'éthanol excitée à 530 nm ($\chi_{réf} = 95$ %), on obtient $\chi = 50$ % pour l'uranine. On peut en déduire

$$\alpha = (1{,}764 \pm 0{,}010)\ \text{mm}^{-1}. \tag{3.5}$$

3.2 Montage optique

Le montage expérimental est représenté sur la figure 3.3. On utilise un laser à argon ionisé continu (Innova 300C, Coherent) dont le faisceau présente un profil gaussien (mode TEM_{00}). Sa longueur d'onde dans le vide est $\lambda_0 = 514{,}5$ nm. Le faisceau est focalisé sur le microcanal au moyen d'un objectif de microscope (Olympus). Ce même objectif est également utilisé pour l'observation par le biais d'un oculaire ou d'une caméra CMOS (Lightning RDT 16000) reliée à un ordinateur. Un filtre rouge coupe le faisceau laser sur la caméra et atténue l'intensité du signal de fluorescence collecté ; l'intensité résiduelle permet de localiser le faisceau laser dans la phase fluorescente.

3.2.1 Col du faisceau

Le profil d'intensité d'un faisceau gaussien se propageant suivant l'axe z obéit à une relation de la forme

$$I(r,z) \propto \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right) \tag{3.6}$$

avec r la coordonnée radiale et

$$\omega^2(z) = \omega_0^2\left(1 + \left(\frac{\lambda_0 z}{\pi\omega_0^2}\right)^2\right) \tag{3.7}$$

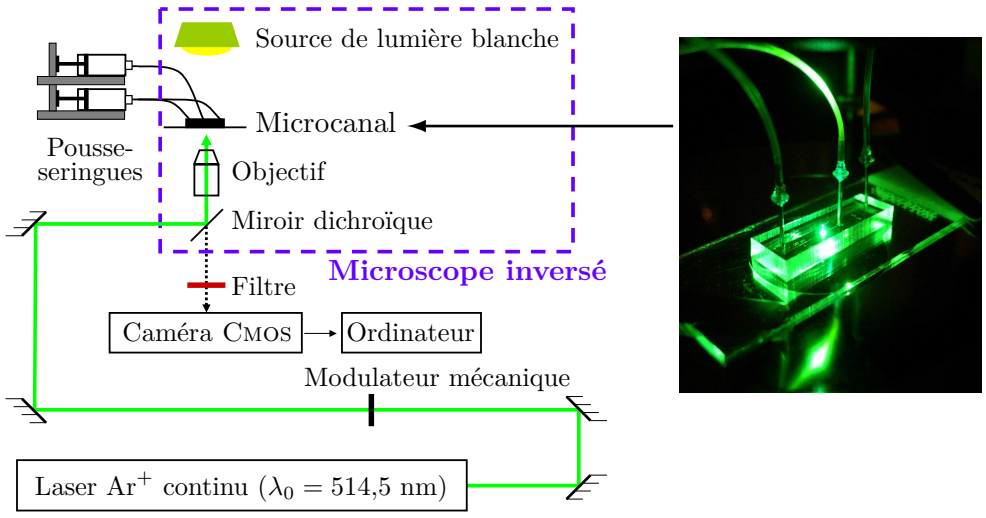

Fig. 3.3 – *Dispositif expérimental.*

le rayon caractéristique du faisceau à une cote z donnée. Dans le plan focal $z = 0$, ce rayon prend la valeur particulière ω_0 appelée rayon au col du faisceau, ou plus simplement col du faisceau *(beam waist)*, qui caractérise ainsi son degré de focalisation. Cette relation peut se récrire sous la forme d'un trinome du second degré en ω_0^2

$$\omega_0^4 - \omega^2(z)\,\omega_0^2 + \left(\frac{\lambda_0 z}{\pi}\right)^2 = 0 \tag{3.8}$$

dont la racine correspondant à un minimum de $\omega(z)$ est

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{\omega^2(z)}{2} - \sqrt{\frac{\omega^4(z)}{4} - \left(\frac{\lambda_0 z}{\pi}\right)^2}}. \tag{3.9}$$

La détermination du col du faisceau consiste ainsi à mesurer le profil d'intensité dans un plan $z =$ cte donné pour en extraire le rayon caractéristique $\omega(z)$. On dispose pour cela la tête d'un mesureur de puissance sur deux platines de translation orthogonales (axes x et y) dans l'axe optique (figure 3.4 (a)). Un iris permet de contrôler la sensibilité du dispositif. Un premier

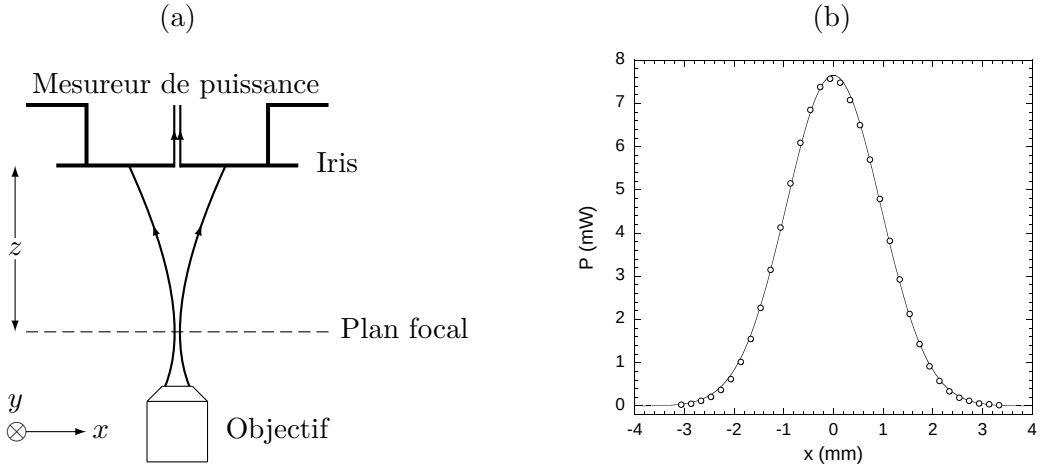

Fig. 3.4 – (a) *Schéma de principe de la mesure du profil d'intensité du faisceau.* (b) *Profil d'intensité mesuré avec un objectif* $\times 5$*, au plan* $z = (64{,}0 \pm 0{,}5)$ mm*. L'origine de l'axe* x *est prise sur l'axe de propagation du faisceau.*

TAB. 3.2 – *Rayon au col mesuré pour différents objectifs.*

Grandissement	Ouverture numérique	$\omega(z)$ mesuré (mm)	ω_0 (µm)
2,5	0,08	$1{,}090 \pm 0{,}033$	$9{,}61 \pm 0{,}36$
5	0,15	$1{,}901 \pm 0{,}057$	$5{,}52 \pm 0{,}21$
10	0,25	$3{,}68 \pm 0{,}11$	$2{,}85 \pm 0{,}11$
20	0,35	$7{,}38 \pm 0{,}23$	$1{,}42 \pm 0{,}05$

balayage suivant l'axe y permet de détecter le plan (x, z) incluant l'axe du faisceau. On peut alors mesurer le profil d'intensité suivant l'axe x dans ce plan (figure 3.4 (b)) : l'interpolation gaussienne de ce profil donne la valeur de $\omega(z)$. La précision sur cette interpolation est estimée à 3 %.

Le tableau 3.2 donne les valeurs de ω_0 obtenues pour les différents objectifs utilisés au cours de cette thèse [1].

3.2.2 Imagerie

L'image du dispositif microfluidique est réalisée à l'aide d'une caméra CMOS offrant une résolution maximale de $1\,280 \times 1\,024$ pixels. La cadence d'acquisition des images varie typiquement de 25 à 3 000 images par seconde. On obtient ainsi des séquences comportant généralement 1 000 images codées sur 256 niveaux de gris. Des informations quantitatives (longueurs, temps et toutes les grandeurs qui en dérivent) peuvent en être extraites après un traitement numérique intégrant la base de temps, réalisé sous MATLAB® ou ImageJ [164].

Chaque séquence d'images requiert un espace de stockage de l'ordre de la dizaine à la centaine de mégaoctets, et le traitement numérique, réalisé en boucle sur toute la séquence, prend plusieurs minutes. Ces réalités imposent deux limitations :

- le nombre total d'images doit être relativement réduit, ce qui interdit les mesures sur des temps longs ;
- l'écoulement ne peut être caractérisé *in situ*.

Lorsque la cadence d'émission des gouttes est relativement réduite (de l'ordre du Hz), le nombre de gouttes est modéré et ces limitations sont relativement peu contraignantes, sous réserve cependant que la stationnarité de l'écoulement soit établie. L'étude d'écoulements à haute cadence (typiquement la centaine de Hz) nous a amené à développer, avec la cellule électronique du laboratoire, un détecteur optoélectronique adapté. Ce travail fera l'objet du chapitre 6.

3.3 Circuit microfluidique

Les microcanaux que nous avons utilisés sont gravés par lithographie « souple » [165] dans du PDMS, et déposés sur une lame de verre, suivant un protocole détaillé dans l'annexe A. Ce travail a été réalisé avec Jean-Baptiste Salmon au Laboratoire du Futur (LOF, unité mixte CNRS-Rhodia-université Bordeaux 1).

Les fluides peuvent être injectés au sein du microcanal en imposant une pression ou un débit. Dans le premier cas, des réservoirs sont disposés à une hauteur déterminée, et la pression imposée est la pression hydrostatique. Dans le second cas les débits d'eau Q_d et d'huile Q_c sont imposés à des seringues en verre (Scientific Glass Engineering, volume utile de 100 µL à 2,5 mL) par des pousse-seringues motorisés (KD Scientific ou Harvard Apparatus PHD 2000). Les liquides sont ensuite conduits dans le microcanal *via* une tubulure en polyéthylène connectée au microcanal par des embouts métalliques, et évacués vers un réservoir en sortie de canal.

1. On y trouvera quelquefois des valeurs légèrement différentes de celles répertoriées ici. Ces différences mineures résultent de modifications ponctuelles du chemin optique.

Bien que les paramètres d'injection des fluides soient contrôlés, on observe des fluctuations de l'écoulement, particulièrement prononcées à petit débit ou lors des changements de régime. Ces fluctuations proviennent de l'élasticité du PDMS et de la tubulure et peuvent être caractérisées, par analogie avec les circuits électriques, avec la notion de capacité hydrodynamique [3, 43].

Chapitre 4

Blocage thermocapillaire d'écoulements microfluidiques lents

Ce chapitre est consacré à l'étude d'un effet thermocapillaire induit optiquement sur un écoulement microfluidique lent, typiquement de l'ordre du $\mathrm{mm} \cdot \mathrm{s}^{-1}$, d'ordre de grandeur comparable à celui de la vitesse thermocapillaire attendue. Nous verrons en particulier comment cet effet peut être appliqué à la maîtrise des conditions de formation des gouttes.

On considère un dispositif microfluidique simple tel que celui représenté sur la figure 4.1. Cette configuration en forme de croix s'apparente à une géométrie à focalisation d'écoulement [166,167]. Elle permet la formation de gouttes régulières, comme nous l'avons vu à la section 1.1.4. Dans ce chapitre, les fluides sont injectés à pression imposée ou à débit imposé. La phase organique, qui sera désignée « huile » par la suite, étant plus mouillante que la phase aqueuse — « eau » —, elle constitue la phase continue.

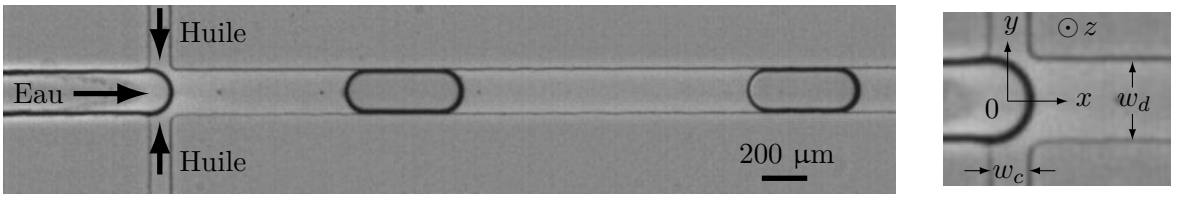

FIG. 4.1 – *Géométrie « en croix » utilisée dans ce chapitre. L'écoulement est décrit dans le repère défini sur l'image de droite, dont l'origine est définie arbitrairement comme le point situé au centre de la croix. La hauteur du microcanal est* $h \simeq 30$ µm ; $w_c \simeq 100$ µm *et* $w_d \simeq 200$ µm.

4.1 Observations qualitatives

4.1.1 Écoulement de base

La formation d'une goutte en microcanal est caractérisée par un cycle d'avancée-reculée du ménisque représenté sur la figure 4.2 (a). Trois grandes étapes peuvent être identifiées. Dans un premier temps, la force qui pilote l'avancée du ménisque, due au gradient de pression imposé à l'eau, doit contrer la poussée de l'huile dont la résultante selon x est en sens opposé. Cette étape s'achève lorsque l'interface eau-huile obstrue le canal de l'huile : elle correspond aux instants $t = 0 - 0{,}32$ s sur la figure. Dès lors, la poussée de l'huile s'exerce sur les côtés du volume d'eau, conduisant à l'apparition d'un « cou » défini comme le point où la section transverse du volume de fluide est minimale. La composante axiale de cette force s'oppose au gradient de pression d'eau vers l'amont, et entraîne vers l'aval le volume situé en aval du cou. La poussée de l'huile étire donc l'interface tout en amincissant le cou ; par ailleurs le ménisque est accéléré, comme le

montre la figure 4.2 (b). Cette seconde étape correspond aux instants $t = 0{,}4-1{,}04$ s sur la figure. Lorsque l'extension de l'interface devient trop défavorable d'un point de vue énergétique [168], la rupture se produit au niveau du cou, conduisant à l'émission d'une goutte. Un nouveau ménisque est ainsi créé en amont du volume de fluide libéré. Cette troisième étape se produit entre les instants $t = 1{,}04$ s et $t = 1{,}12$ s dans l'exemple illustré sur la figure 4.2 (a). Le scénario présenté ici est qualitativement le même que les fluides soient injectés en pression ou en débit.

En superposant à cet écoulement de base un écoulement Marangoni d'amplitude comparable, on peut espérer interrompre totalement l'avancée de la goutte, ainsi que nous l'avons vu au chapitre 2.

4.1.2 En présence de laser

On positionne le faisceau laser sur l'axe central de l'écoulement, en aval du canal de l'huile (à $x \simeq 3\,w_c$). Au-delà d'une puissance laser seuil, on observe les comportements suivants.

Blocage du ménisque

La figure 4.3 (a) représente une séquence d'images montrant l'avancée du ménisque. Lorsque celui-ci atteint la position du spot (instant $t = 0$ sur la figure), son avancée est interrompue. Ce blocage a une durée finie, de l'ordre de la seconde (3,72 s dans le cas représenté sur la figure). Après la libération du ménisque, le processus de formation de la goutte reprend comme décrit précédemment : on voit sur la figure 4.3 (b) que la dynamique d'avancée du ménisque n'est influencée par le laser que lorsque le ménisque se trouve au voisinage du spot.

Échauffement laser

La position du spot laser est, comme nous l'avons évoqué à la section 3.2, visualisée par la tache de fluorescence du colorant dissout dans la phase aqueuse. Pendant le blocage du ménisque, cette tache est située légèrement en amont du ménisque. En effet, l'indice de réfraction de l'eau étant inférieur à celui de l'huile (tableau 3.1), la courbure verticale du ménisque empêche la réfraction du faisceau tant que l'angle d'incidence dépasse l'angle limite de réflexion totale. L'existence de cette tache permet par ailleurs de confirmer que la phase aqueuse s'échauffe au niveau du spot.

À forte puissance, cet échauffement conduit parfois à la nucléation de bulles de gaz, ce qui laisse supposer que la température d'ébullition de l'eau est atteinte. Par ailleurs, une tache sombre se forme sur les parois du microcanal au cours des passages successifs de la phase aqueuse sous l'excitation laser. Ce dépôt, vraisemblablement issu de la photodégradation du colorant ou du tensioactif, altère les propriétés de surface des parois, induisant un mouillage partiel de l'eau, mais est progressivement éliminé par l'écoulement lorsque le laser est éteint. En outre, une altération irréversible des propriétés de surface du microcanal peut se produire en cas de chauffage excessif prolongé.

Plusieurs colorants ont été testés afin d'évaluer la généralité des phénomènes observés. Outre l'uranine, une solution de colorant alimentaire rouge (E122 ou carmoisine) issue de la grande distribution (Vahiné), et de l'encre noire (Waterman) ont permis d'observer des comportements qualitativement similaires.

Écoulements locaux

La présence fortuite de particules ou de petites bulles en suspension dans l'une des deux phases permet de suivre l'écoulement local du fluide. On peut ainsi observer, au voisinage du spot laser, un écoulement rapide le long de l'interface, qui conduit à une recirculation du fluide en volume, plus lente, sous forme de rouleaux (figure 4.4 (a)). Cet écoulement interfacial, orienté vers le spot, résulte de la superposition du cisaillement de l'huile au niveau de la croix, ici orienté

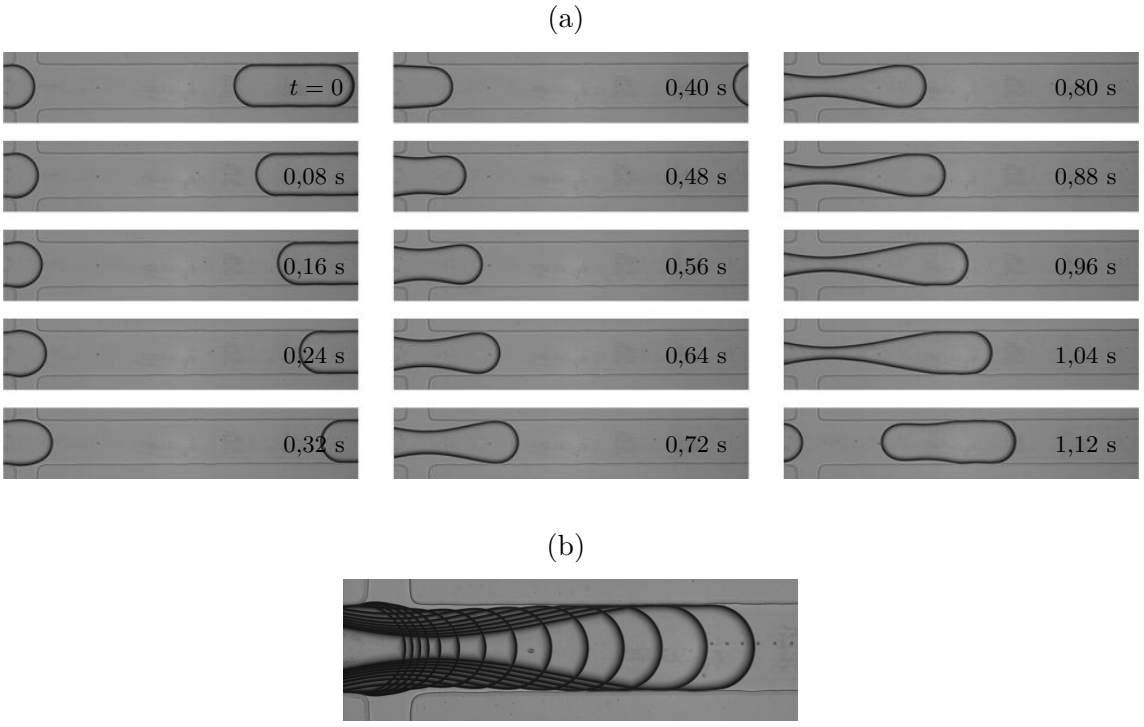

Fig. 4.2 – (a) *Série d'instantanés montrant l'avancée du ménisque lors de la formation d'une goutte. Cette série a été réalisée à pressions imposées, avec* $\Delta p_c = 1\,835$ Pa *et* $\Delta p_d = 1\,875$ Pa. (b) *Superposition des images correspondant aux instants* $t = 0 - 1{,}04$ s *(avec un incrément temporel de* 0,08 s*), montrant l'accélération du ménisque lorsque la poussée de l'huile s'exerce vers l'aval.*

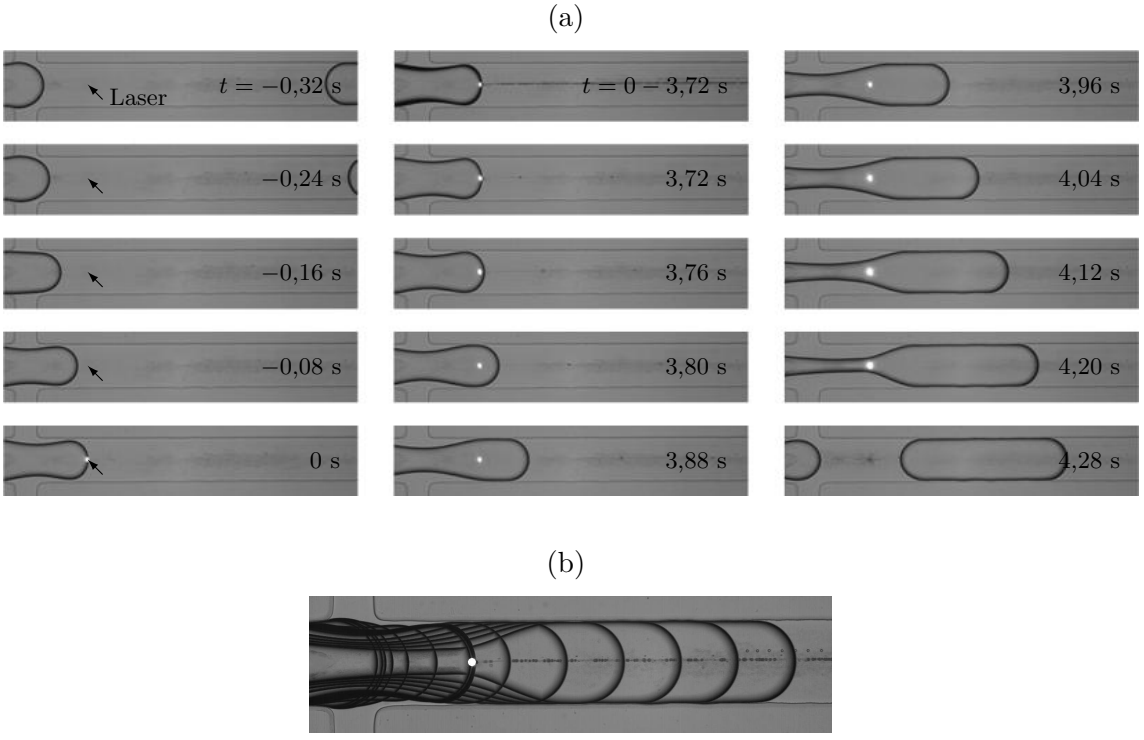

Fig. 4.3 – (a) *Série d'instantanés montrant l'avancée du ménisque et son blocage sous l'effet du faisceau laser. Les conditions d'injection sont identiques à celles de la figure* 4.2 *; la puissance laser est* $P = 57$ mW, $\omega_0 = 2{,}85$ µm. (b) *Superposition des images correspondant aux instants* $t = -0{,}52 - 4{,}20$ s. *L'incrément temporel associé aux images superposées est* 0,08 s.

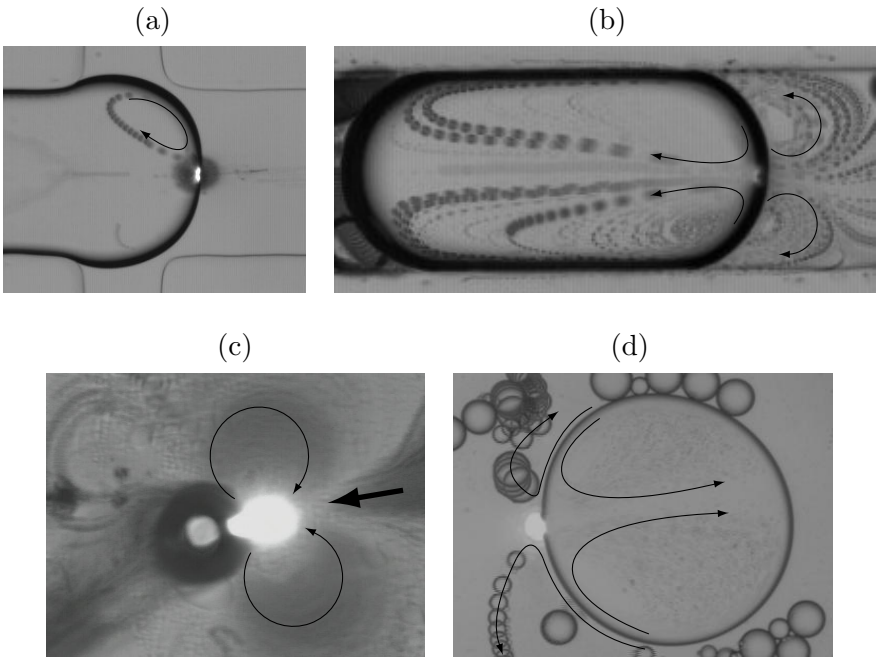

FIG. 4.4 – *Superpositions d'images illustrant les tourbillons thermocapillaires* (a) *dans une goutte d'eau dans l'huile en microcanal, en présence d'un écoulement de base (à débits imposés) ;* (b) *dans l'eau et dans l'huile, dans une configuration similaire à la précédente mais en présence de traceurs ;* (c) *autour d'une bulle de gaz dans l'eau au repos, en présence de traceurs ;* (d) *dans une goutte d'huile et dans l'eau au repos, en présence d'un tensioactif (SDS dans l'eau).*

vers le spot, d'une part ; et du terme de traction Marangoni, d'autre part. L'orientation de cette contrainte est dictée, comme on l'a vu au chapitre 2, par le signe du terme décrivant la variation de la tension interfaciale avec la température, $\left(\frac{\partial\sigma}{\partial T}\right)_{\mathit{eff}}$, défini en présence d'un écoulement de tensioactif à l'interface par l'expression (2.6) et inconnu *a priori*. L'observation de ces rouleaux, aussi bien dans l'huile que dans l'eau, a été confirmée en ajoutant des traceurs (particules de toner d'imprimante) dans les deux phases (figure 4.4 (b)).

Pour observer l'écoulement thermocapillaire en s'affranchissant du cisaillement de l'huile, l'expérience a été reproduite avec des bulles et des gouttes immergées dans une solution d'uranine au repos entre deux lames de microscope. Sur une interface eau-gaz, en l'absence de tensioactif $\left(\frac{\partial\sigma}{\partial T} < 0\right)$, l'écoulement interfacial observé s'éloigne du spot comme le représente la figure 4.4 (c), la bulle de gaz semblant attirée par le point chaud. Ce comportement s'accorde avec celui généralement présenté dans la littérature. Une goutte d'huile (hexadécane pur) est par ailleurs plongée dans l'eau en présence de SDS : le mouvement de l'interface est orienté vers le spot (figure 4.4 (d)), ce qui traduit un accroissement de la tension interfaciale dans les zones chaudes.

Si ce dernier système n'est pas exactement identique, du fait de l'emploi d'un tensioactif différent, à celui utilisé dans nos expériences en microcanal, il paraît néanmoins vraisemblable que le comportement observé avec le SDS dans l'eau soit généralisable au Span® 80 dans l'huile. De fait, les expériences en microcanal décrites ici pour le cas du Span® 80 dans l'hexadécane ont été reproduites en remplaçant ce tensioactif par du SDS ou du Triton X-100 dans l'eau à des concentrations de l'ordre de la CMC ou plus élevées. Les comportements observés sont qualitativement similaires. Ainsi, l'effet présenté dans ce chapitre n'est pas intimement lié à la nature du tensioactif utilisé, et peut être reproduit dans des conditions différentes.

Un autre écoulement d'origine locale est aussi observé lors du blocage, notamment à forte puissance laser. Des objets de dimension submicrométrique paraissent éjectés du point de stagnation de l'interface, au niveau du spot laser. Une traînée noire, visible sur la superposition

d'images durant le blocage (figure 4.3 (a)), se forme ainsi sur l'axe central de l'écoulement. Si cette traînée n'a pas été caractérisée, il semble qu'elle soit constituée de microgouttelettes, qui se formeraient au niveau du ménisque par un mécanisme de *tip streaming* [169].

Ces observations montrent ainsi que l'interface eau-huile, ainsi chauffée, est soumise à une contrainte tangentielle orientée vers le point chaud, qui engendre un écoulement interfacial dans le même sens. Cet écoulement conduit à la migration thermocapillaire de la goutte, orientée dans le sens opposé au gradient de température, s'opposant à l'écoulement de base. L'effet Marangoni est donc à même d'expliquer le comportement observé, en admettant que la tension interfaciale augmente de manière effective avec la température,

$$\left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\mathit{eff}} > 0, \tag{4.1}$$

ce que nous avons montré empiriquement. Nous allons maintenant caractériser de manière plus quantitative cette migration.

4.2 Vitesse thermocapillaire

La vitesse thermocapillaire d'une goutte se définit, ainsi que nous l'avons vu au chapitre 2, comme la vitesse globale résultant des contraintes Marangoni exercées sur l'interface avec le fluide dans lequel elle est immergée. Ainsi, en notant $\mathbf{u}_0$ la vitesse imposée au ménisque par l'écoulement de base, la loi de composition des vitesses permet d'écrire la vitesse du ménisque $\mathbf{u}_m$ comme

$$\mathbf{u}_m(x) = \begin{cases} \mathbf{u}_0(x) & \text{si } x \neq x_{spot} \\ \mathbf{u}_0(x_{spot}) + \mathbf{u}_{th} & \text{si } x = x_{spot} \end{cases} \tag{4.2}$$

où x_{spot} est la position du faisceau laser.

Dans cette section, on se propose de déterminer la vitesse thermocapillaire à partir de la mesure de la vitesse instantanée du ménisque.

4.2.1 Mesure de vitesse

Considérons un écoulement microfluidique fluctuant, pour lequel la vitesse du ménisque varie fortement d'une goutte à la suivante. De telles variations peuvent résulter d'une modification brutale des conditions d'écoulement, par exemple le blocage thermocapillaire d'un ménisque. Cet écoulement est soumis à une excitation laser donnée. La vitesse instantanée des ménisques successifs, déterminée sur une séquence d'images complète (40 s), est représentée sur la figure 4.5 (a).

Pour compenser la vitesse d'un ménisque, la vitesse thermocapillaire doit être orientée en sens opposé et vérifier

$$u_{th} \geqslant u_0(x_{spot}), \tag{4.3}$$

l'égalité correspondant à l'équilibre des vitesses. Si la vitesse thermocapillaire dépasse la vitesse u_0, le ménisque devrait reculer, mais ce recul est limité par la condition de réflexion totale : au-delà, le faisceau incident n'est plus absorbé et l'effet Marangoni disparaît faute d'échauffement. Compte tenu des rayons au col utilisés, ce recul ne peut être visualisé de manière fiable et la position d'équilibre du ménisque est toujours, en première approximation, celle du spot laser. L'existence d'un blocage signifie donc que la vitesse thermocapillaire est au moins égale à la vitesse imposée au ménisque considéré par l'écoulement de base.

Dans le cas où la vitesse du ménisque dépasse la vitesse thermocapillaire, le ménisque est ralenti mais non bloqué.

Si la mesure de la vitesse u_0 d'un ménisque donné est, en elle-même, impossible au niveau du spot — la seule vitesse directement mesurable est celle du ménisque —, elle est peu différente

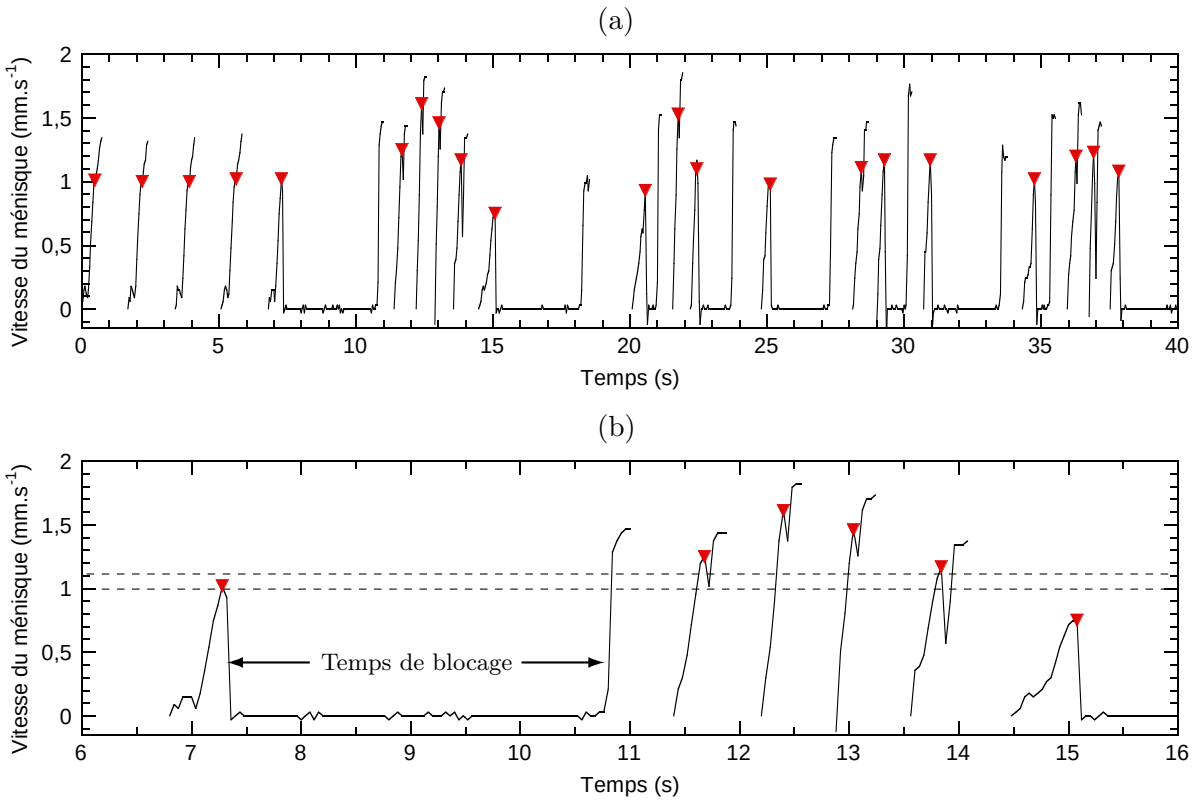

FIG. 4.5 – (a) *Vitesse du ménisque mesurée pour une séquence de* 21 *gouttes successives pendant* 40 s. *Le laser est allumé vers* $t \simeq 6{,}5$ s ; $P = 49$ mW *et* $\omega_0 = 2{,}85$ µm. *Les triangles correspondent au passage du ménisque au niveau du spot.* (b) *Zoom de la figure précédente. Les deux lignes en pointillé encadrent la valeur de la vitesse thermocapillaire : les gouttes dont la vitesse au niveau du spot est plus petite que la borne inférieure sont toutes bloquées, celles dont la vitesse au niveau du spot est plus grande que le borne supérieure sont seulement ralenties.*

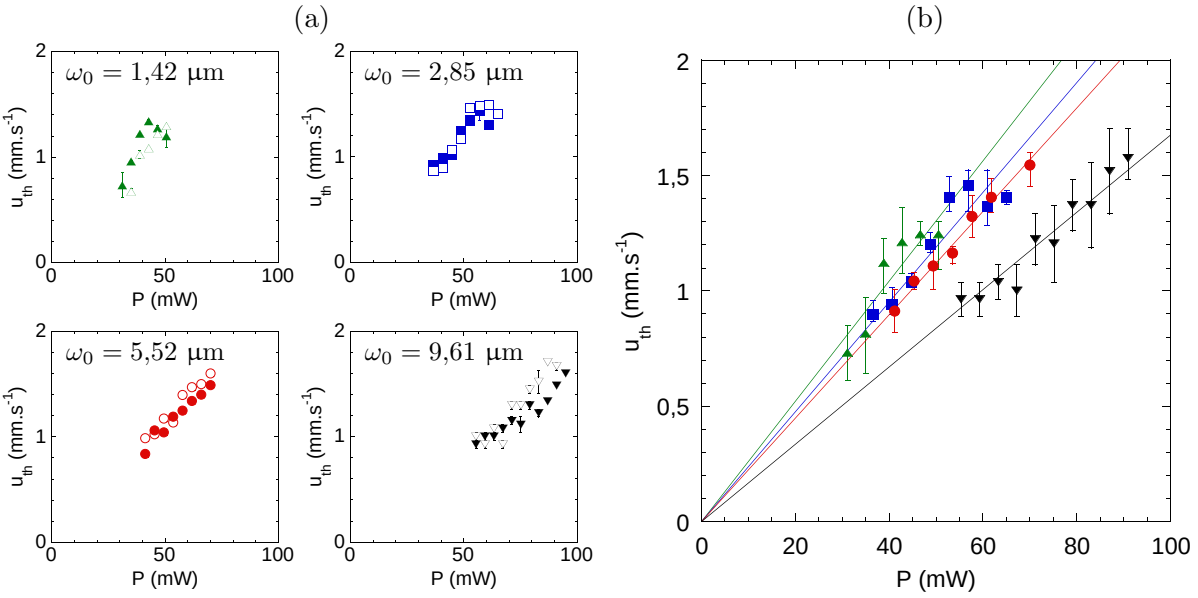

FIG. 4.6 – *Vitesse thermocapillaire déduite des vitesses de ménisque pour différentes puissances et différents rayons au col.* (a) *Mesures en pression (symboles pleins) et en débit (symboles ouverts). Pour chaque point, le bas de la barre d'erreur indique la vitesse du ménisque bloqué le plus rapide, le haut de la barre d'erreur correspond à la vitesse du ménisque non bloqué le plus lent.* (b) *Moyenne des mesures en débit et en pression ; les barres d'erreur indiquent l'écart entre cette moyenne et les vitesses extrémales observées à* P *et* ω_0 *donnés.*

de la vitesse du ménisque un instant avant l'interaction. Cette dernière vitesse est accessible à la mesure : elle est représentée, pour chaque ménisque, par les triangles sur la figure 4.5. On peut ainsi déterminer, à puissance laser donnée, un encadrement de la vitesse thermocapillaire : cette vitesse est comprise entre la vitesse du ménisque non bloqué le plus lent et la vitesse du ménisque bloqué le plus rapide. Cet encadrement est représenté à titre d'exemple sur la figure 4.5 (b), où le blocage ne se produit que pour les ménisques plus lents qu'une valeur limite, voisine de 1,1 $\mathrm{mm \cdot s^{-1}}$ dans les conditions considérées.

On considère alors que la vitesse thermocapillaire est la moyenne du majorant et du minorant. La figure 4.6 (a) représente cette vitesse mesurée pour différentes puissances, avec différents cols de faisceau, en débit et en pression. On observe qu'il n'y a pas de différence notable entre débit et pression. La figure 4.6 (b) représente ainsi la moyenne des données en débit et en pression. Les barres d'erreur représentent l'écart entre cette valeur moyenne et les valeurs extrêmes mesurées (vitesse du ménisque non bloqué le plus lent et vitesse du ménisque bloqué le plus rapide). L'évolution de la vitesse thermocapillaire avec la puissance laser suit une tendance linéaire, avec une petite dépendance en ω_0. Un calcul du gradient de température devrait permettre d'expliciter cette dépendance.

4.2.2 Gradient de température

Géométrie employée pour le calcul

On cherche à déterminer le gradient de température induit par la distribution de température sur le ménisque. Le système considéré, représenté sur la figure 4.7 (a), est constitué de couches superposées de propriétés thermiques (conductivité Λ, diffusivité D_T) différentes. Le faisceau laser traverse successivement une lame de microscope, puis une épaisseur d'huile, avant d'être réfracté dans l'eau, où une partie de l'énergie est absorbée. Le faisceau ressort ensuite dans l'huile, puis dans le PDMS.

Afin de conserver une géométrie à symétrie de révolution, ce système est idéalisé comme représenté sur la figure 4.7 (b). On considère alors une couche d'eau, absorbante, d'épaisseur $h = 30$ µm et d'extension latérale infinie, insérée entre les deux parois de verre et de PDMS, supposées semi-infinies. Les grandeurs relatives au verre, à l'eau et au PDMS sont indicées 1, 2 et 3 respectivement.

Les films de mouillage d'huile sont négligés compte tenu de leur faible épaisseur au centre du canal comparée à celle des autres couches. L'influence des transferts thermiques aux parois, notamment à travers ces films de mouillage, sur la distribution de température calculée ici est discutée dans l'annexe C. Notons enfin que la conductivité thermique de l'hexadécane est très

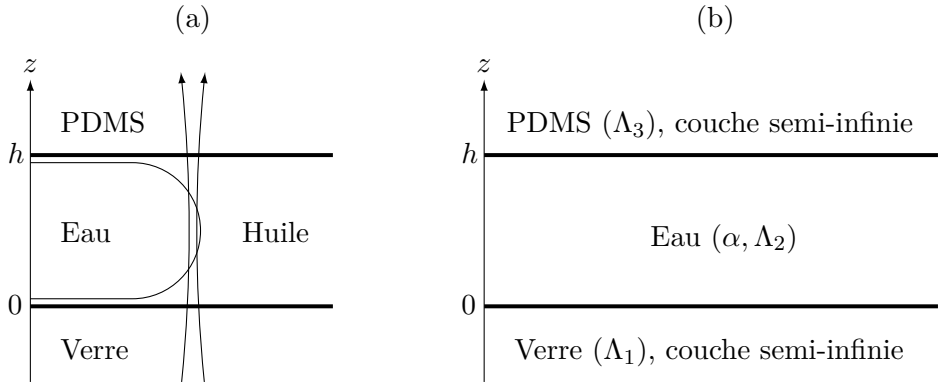

Fig. 4.7 – *Représentations schématiques* (a) *réaliste et* (b) *idéalisée du problème thermique considéré. On a* $\alpha = 1{,}764\ \mathrm{mm^{-1}}$, $\Lambda_1 = 1{,}38\ \mathrm{W \cdot K^{-1} \cdot m^{-1}}$, $\Lambda_2 = 0{,}6\ \mathrm{W \cdot K^{-1} \cdot m^{-1}}$ *et* $\Lambda_3 = 0{,}15\ \mathrm{W \cdot K^{-1} \cdot m^{-1}}$ *; la conductivité thermique de l'hexadécane vaut* $0{,}14\ \mathrm{W \cdot K^{-1} \cdot m^{-1}}$.

voisine de celle du PDMS.

D'autre part, la longueur de Rayleigh

$$\lambda_R = \frac{n\pi\omega_0^2}{\lambda_0} \tag{4.4}$$

peut être estimée entre 18 µm (pour $\omega_0 = 1{,}5$ µm) et 812 µm ($\omega_0 = 10$ µm) dans la gamme de rayons au col considérée. Le faisceau laser peut être considéré comme focalisé sur une distance de $2\lambda_R$, supérieure à l'épaisseur d'eau traversée. On suppose ainsi que le faisceau est cylindrique, et on se place dans le système de coordonnées cylindriques à symétrie de révolution (r, z) attaché à l'axe du faisceau laser.

Équation de la chaleur

L'équation de la chaleur s'écrit, dans les trois milieux,

$$\begin{aligned} \frac{\partial T_{1,3}}{\partial t} &= D_{T_{1,3}} \nabla^2 T_{1,3} \\ \frac{\partial T_2}{\partial t} + (\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\nabla})\, T_2 &= D_{T_2}\nabla^2 T_2 + \frac{D_{T_2}}{\Lambda_2}\alpha I(r,z), \end{aligned} \tag{4.5}$$

avec $\mathbf{u}$ la vitesse de l'eau et $I(r, z)$ l'intensité du laser, donnée par

$$I(r,z) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2} - \alpha z\right). \tag{4.6}$$

L'équation de la chaleur (4.5) dans l'eau fait apparaître un terme diffusif, $D_T\nabla^2 T$, et un terme advectif, $(\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\nabla})\, T$. Le rapport des deux définit le nombre de Péclet thermique

$$\mathrm{Pé}_T = \frac{(\mathbf{u}\cdot\boldsymbol{\nabla})\, T}{D_T\nabla^2 T} \sim \frac{u\ell_T}{D_{T_2}} \tag{4.7}$$

avec ℓ_T une longueur caractéristique associée à la distribution de température du liquide. L'extension de cette distribution étant pilotée par les conditions aux limites, ℓ_T est comparable à la demi-hauteur du microcanal : $\ell_T \sim \frac{h}{2} = 15$ µm. Par ailleurs, les vitesses moyennes d'écoulement sont typiquement voisines de 1 mm $\cdot$ s^{-1}, bien que des vitesses locales plus élevées soient observées au voisinage du spot laser (figure 4.4 (a)). Comme $D_{T_2} = 1{,}4 \times 10^{-7}$ m$^2 \cdot$ s^{-1}, $\mathrm{Pé}_T \sim 0{,}1$. On peut ainsi se placer dans l'approximation diffusive.

Le temps caractéristique de chauffage

$$\tau_T \sim \frac{\ell_T^2}{D_{T_2}} \sim \frac{h^2}{4D_{T_2}} \tag{4.8}$$

est ainsi de l'ordre de la ms. La distribution de température peut donc être supposée stationnaire dans le cas considéré ici.

Par ailleurs, remarquant que $\alpha z \leqslant \alpha h \simeq 5 \times 10^{-2} \ll 1$, on peut négliger la variation axiale d'intensité laser.

L'équation (4.5) se récrit alors, à l'état stationnaire $\left(\frac{\partial T_i}{\partial t} = 0\right)$ et en notant $\nabla_r^2 = \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial}{\partial r}\right)$ le laplacien radial,

$$\begin{aligned} \left(\nabla_r^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) T_{1,3} &= 0 \\ \left(\nabla_r^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) T_2 + \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\, G(r) &= 0, \end{aligned} \tag{4.9}$$

où $G(r) = \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right)$ est l'enveloppe gaussienne de l'intensité laser. On impose comme conditions aux limites aux interfaces la continuité de la température

$$\begin{aligned} T_1(r, z = 0) &= T_2(r, z = 0) \\ T_2(r, z = h) &= T_3(r, z = h) \end{aligned} \tag{4.10}$$

et celle des flux de chaleur

$$\begin{aligned} \Lambda_1 \left(\frac{\partial T_1}{\partial z}\right)_{z=0} &= \Lambda_2 \left(\frac{\partial T_2}{\partial z}\right)_{z=0} \\ \Lambda_2 \left(\frac{\partial T_2}{\partial z}\right)_{z=h} &= \Lambda_3 \left(\frac{\partial T_3}{\partial z}\right)_{z=h}. \end{aligned} \tag{4.11}$$

Du fait de la géométrie cylindrique du problème, nous allons résoudre l'équation (4.9) dans l'espace de Fourier-Bessel. Le champ de température se décompose selon les modes de Fourier-Bessel en utilisant la transformation ($i = 1, 2, 3$)

$$\tilde{T}_i(k, z) = \int_0^\infty T_i(r, z) \mathcal{J}_0(kr) r \, \mathrm{d}r, \tag{4.12}$$

avec $\mathcal{J}_0(kr)$ la fonction de Bessel de première espèce d'ordre zéro. Les composantes du laplacien radial s'écrivent

$$\nabla_r^2 \tilde{T}_i(k, z) = -k^2 \tilde{T}_i(k, z). \tag{4.13}$$

Enfin, la transformée de Fourier-Bessel de la fonction gaussienne $G(r)$ a également une forme gaussienne [170] :

$$\tilde{G}(k) = \int_0^\infty G(r) \mathcal{J}_0(kr) r \, \mathrm{d}r = \frac{\omega_0^2}{4} \exp\left(-\frac{k^2 \omega_0^2}{8}\right). \tag{4.14}$$

L'équation de la chaleur s'écrit donc dans chaque milieu sous la forme d'une équation différentielle linéaire du second ordre à coefficients constants en z

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - k^2\right) \tilde{T}_{1,3} &= 0 \\ \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - k^2\right) \tilde{T}_2 + \frac{2P}{\pi \omega_0^2} \frac{\alpha}{\Lambda_2} \tilde{G}(k) &= 0 \end{aligned} \tag{4.15}$$

dont les solutions s'écrivent sous la forme

$$\begin{aligned} \tilde{T}_1(k, z) &= A_1(k) \, \mathrm{e}^{kz} \\ \tilde{T}_2(k, z) &= A_2(k) \, \mathrm{e}^{kz} + B_2(k) \, \mathrm{e}^{-kz} + \frac{2P}{\pi \omega_0^2} \frac{\alpha}{\Lambda_2} \frac{\tilde{G}(k)}{k^2} \\ \tilde{T}_3(k, z) &= B_3(k) \, \mathrm{e}^{-kz}, \end{aligned} \tag{4.16}$$

les solutions divergentes en $z \to \pm\infty$ étant éliminées. Les conditions aux limites (4.10) et (4.11) conduisent respectivement à

$$\begin{aligned} A_1(k) &= A_2(k) + B_2(k) + \frac{2P}{\pi \omega_0^2} \frac{\alpha}{\Lambda_2} \frac{\tilde{G}(k)}{k^2} \\ B_3(k) \, \mathrm{e}^{-kh} &= A_2(k) \, \mathrm{e}^{kh} + B_2(k) \, \mathrm{e}^{-kh} + \frac{2P}{\pi \omega_0^2} \frac{\alpha}{\Lambda_2} \frac{\tilde{G}(k)}{k^2} \end{aligned} \tag{4.17}$$

et à

$$\begin{aligned} A_1(k) &= \frac{\Lambda_2}{\Lambda_1} \left(A_2(k) - B_2(k)\right) \\ B_3(k) \, \mathrm{e}^{-kh} &= \frac{\Lambda_2}{\Lambda_3} \left(A_2(k) \, \mathrm{e}^{kh} - B_2(k) \, \mathrm{e}^{-kh}\right). \end{aligned} \tag{4.18}$$

On en déduit

$$\begin{aligned}
A_1(k) &= -\frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}\frac{\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\mathrm{e}^{-2kh}+2\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\mathrm{e}^{-kh}-\left(1+\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)}{\left(1+\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)-\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\left(1-\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\mathrm{e}^{-2kh}} \\
A_2(k) &= -\frac{P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}\mathcal{F}_+(k) \\
B_2(k) &= -\frac{P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}\mathcal{F}_-(k) \\
B_3(k) &= -\frac{P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_3}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}\left(\mathcal{F}_+(k)\,\mathrm{e}^{2kh}-\mathcal{F}_-(k)\right)
\end{aligned} \tag{4.19}$$

avec

$$\mathcal{F}_\pm(k) = 1+\left(1\pm\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\frac{\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\mathrm{e}^{-2kh}+2\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\mathrm{e}^{-kh}-\left(1+\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)}{\left(1+\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)-\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\left(1-\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\mathrm{e}^{-2kh}}. \tag{4.20}$$

On peut donc déterminer le champ de température dans l'espace de Fourier-Bessel dans chaque milieu, et en déduire le champ de température correspondant dans l'espace réel en calculant sa transformée de Fourier-Bessel inverse. Dans l'eau, celle-ci s'écrit

$$T_2(r,z) = \frac{\alpha P}{2\pi\Lambda_2}\int_0^\infty \frac{\mathrm{e}^{-\frac{k^2\omega_0^2}{8}}}{k}\left(1-\frac{\mathcal{F}_+(k)}{2}\,\mathrm{e}^{kz}-\frac{\mathcal{F}_-(k)}{2}\,\mathrm{e}^{-kz}\right)\mathcal{J}_0(kr)\,\mathrm{d}k. \tag{4.21}$$

L'intégrale (4.21) est calculée numériquement.

Le calcul du champ de température présenté dans cette section est basé sur une idéalisation du problème réel, comme représenté sur la figure 4.7, où l'extension de la couche d'eau est supposée infinie dans le plan (x, y). La couche d'eau réelle a une largeur finie, imposée par les parois du canal, et une longueur semi-infinie, délimitée par le ménisque échauffé.

Comme la largeur du canal est grande devant sa hauteur, imposée comme taille caractéristique du système par les conditions aux limites, l'effet de largeur finie peut être négligé. La nature semi-infinie suivant x est plus problématique : la conductivité de l'eau étant plus grande que celle de l'huile, négliger l'existence d'une condition aux limites à l'interface eau-huile, qui correspond précisément au point de chauffage, doit conduire à sous-estimer l'élévation de température de l'eau au niveau du ménisque. Néanmoins, la phase aqueuse étant la seule échauffée, la considérer infinie signifie que le volume échauffé est surestimé par rapport au cas réel. Ainsi, l'erreur induite par cette idéalisation du problème, au demeurant nécessaire pour traiter le problème de façon analytique, est difficile à évaluer.

Distribution de température sur l'interface

À partir du calcul précédent, on cherche à établir la distribution de température sur un ménisque virtuel constitué des points situés à l'emplacement du ménisque réel. Cela devrait permettre de décrire la distribution de température sur l'interface, sous réserve que l'idéalisation du système ne la modifie pas sensiblement.

On cherche donc à exprimer la position d'un point de l'interface en fonction des coordonnées dans le système (r, z) attaché à l'axe du faisceau laser. La figure 4.8 représente schématiquement la géométrie considérée. L'origine du repère attaché au ménisque est fixée dans le plan $z = 0$, au centre de courbure dans ce plan. Un point M de l'interface est ainsi décrit dans ce repère par ses coordonnées (R, ϕ, z), R étant le rayon de courbure dans le plan considéré et ϕ l'angle polaire. Du fait de la courbure verticale, R dépend de z. Les rayons de courbure étant imposés par la

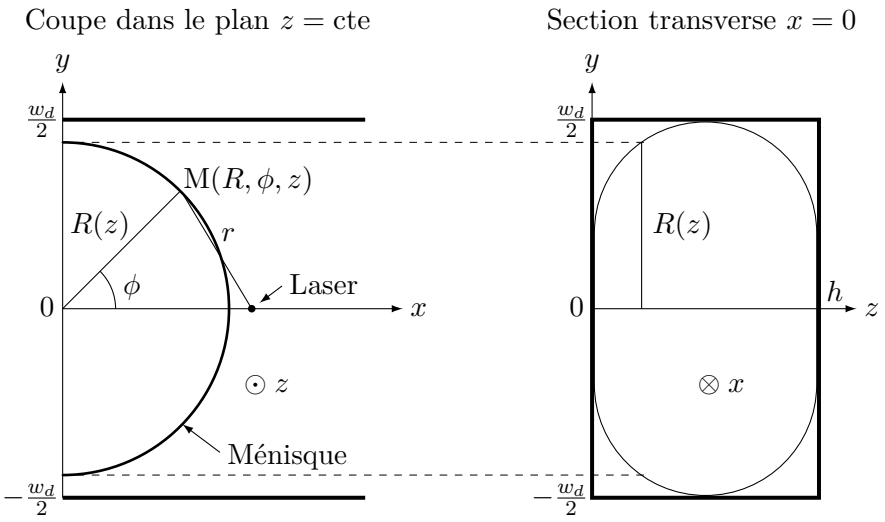

Fig. 4.8 – *Représentation du ménisque virtuel dans un plan* $z = \text{cte}$ *et en section transverse. La position d'un point* M *du ménisque est ainsi définie dans les repères attachés au laser et au centre de courbure du ménisque.*

géométrie du canal, on obtient facilement

$$\phi = \arccos\left(\frac{\frac{w_d^2}{4} - r^2 + R^2(z)}{w_d\, R(z)}\right) \tag{4.22}$$

$$R(z) = \frac{w_d - h}{2} + \sqrt{z\,(h - z)}. \tag{4.23}$$

Ainsi, dans chaque plan $z = \text{cte}$, on peut calculer la température sur l'interface, $T(\phi)$ (figure 4.9), et son gradient azimutal, $\frac{1}{R}\frac{\partial T}{\partial \phi}$ (figure 4.10). La composante verticale du gradient de température est plus difficile à établir. Elle nécessiterait un calcul dans un système de coordonnées tenant compte des courbures dans le plan et verticale. Cependant, du fait de la réflexion totale, l'axe optique est décalé par rapport à l'extrémité du ménisque : le décalage minimal est de 1 µm pour un rayon de courbure de 15 µm, auquel s'ajoute ω_0. Ce décalage restreint la zone où la forme du ménisque varie fortement avec z : on néglige ainsi la composante verticale du gradient de température. Nous considérons donc la distribution de température dans des plans horizontaux indépendants, chaque plan reconstituant la dépendance verticale de la distribution de température.

L'élévation de température est surtout notable aux petits angles, qui correspondent à de petites distances au spot laser. À rayon au col fixé (figure 4.9 (a)), la distribution de température varie peu au voisinage du plan médian, mais diminue notablement quand on s'en éloigne. Cette dépendance apparente en z provient du fait que l'interface est plus éloignée du faisceau près des parois horizontales. On observe aussi que la température est plus grande à la paroi du haut qu'à celle du bas : la couche inférieure, en verre, a une conductivité thermique plus grande que celle de l'eau, permettant une évacuation de la chaleur plus efficace. Inversement, la couche de PDMS est moins conductrice que l'eau, défavorisant les transferts thermiques dans ce milieu. De ce fait, la température maximale de l'interface n'est pas atteinte dans le plan médian mais dans un plan un peu plus proche de la paroi de PDMS, comme le montre l'encart de la figure 4.9 (a).

La figure 4.9 (b) montre que la température présente une petite dépendance en ω_0, très localisée au voisinage du faisceau. L'encart de cette figure montre par ailleurs que la forme radiale de la distribution de température s'écarte significativement de la forme gaussienne, imposée au voisinage de l'axe optique par le terme source, au-delà d'une distance de l'ordre de ω_0. La

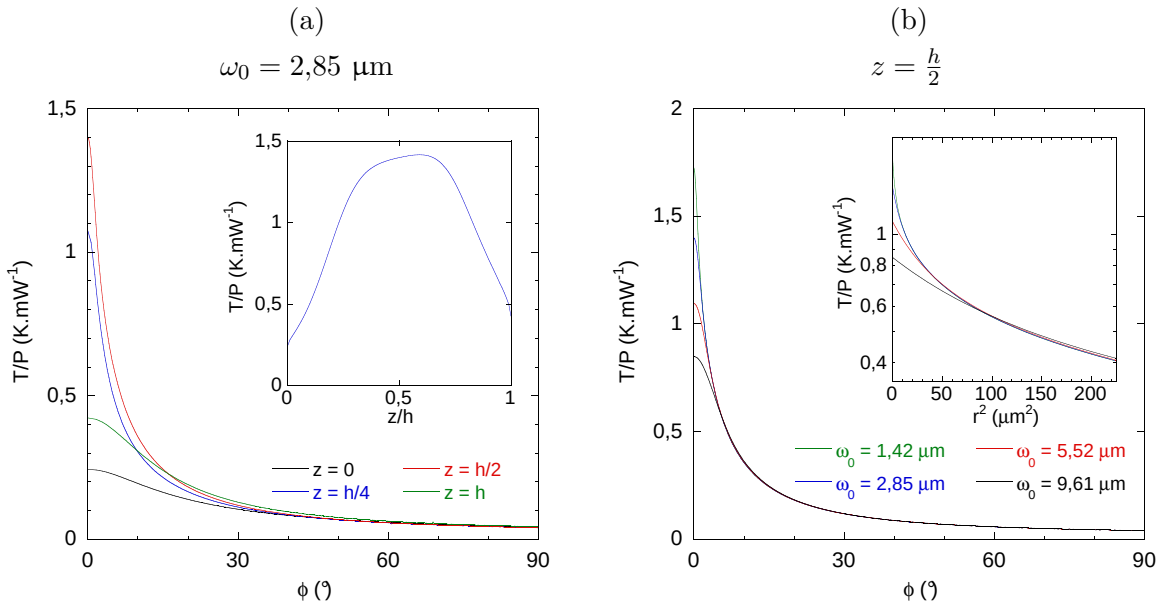

FIG. 4.9 – *Distribution de température sur l'interface, normalisée par la puissance laser.* (a) *Distribution de température dans plusieurs plans* $z =$ cte *pour* $\omega_0 = 2{,}85$ µm *fixé. L'encart représente l'évolution de la température sur l'axe du faisceau laser (en* $r = 0$*) sur l'épaisseur du microcanal.* (b) *Variation de la distribution de température avec* ω_0 *pour* $z = \frac{h}{2}$ *fixé. Encart : température (en échelle logarithmique) en fonction du carré de la distance au faisceau, près de son axe.*

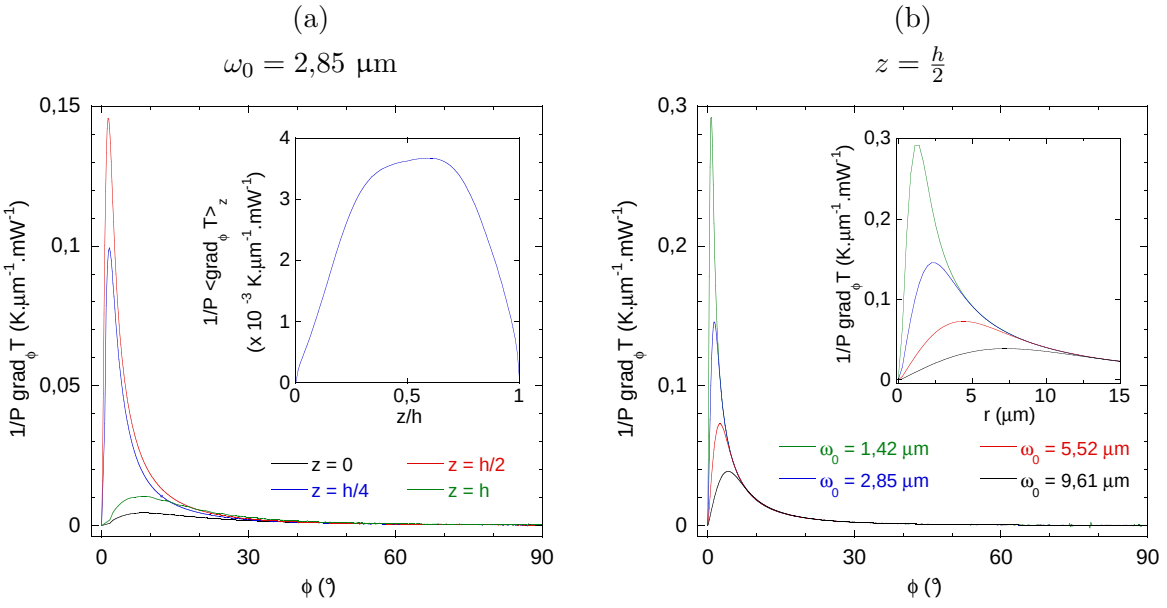

FIG. 4.10 – *Gradient de température azimutal sur l'interface, normalisé par la puissance laser.* (a) *Gradient de température dans plusieurs plans* $z =$ cte *pour* $\omega_0 = 2{,}85$ µm *fixé. L'encart représente la variation du gradient de température moyen sur l'épaisseur du microcanal.* (b) *Variation du gradient de température avec* ω_0 *pour* $z = \frac{h}{2}$ *fixé. Encart : gradient de température en fonction de la distance au faisceau, près de son axe.*

distribution de température au-delà de cette zone correspond à la diffusion de la température dans une zone non irradiée.

On remarque enfin que les élévations locales de température calculées sont parfaitement compatibles avec l'ébullition constatée à des puissances laser typiquement comprises entre 50 et 100 mW et croissantes avec ω_0. La pertinence du modèle à géométrie simplifiée considéré ici est ainsi justifiée *a posteriori*.

Le gradient de température sur l'interface (figure 4.10) atteint localement des valeurs de l'ordre du $\mathrm{K} \cdot \mu\mathrm{m}^{-1}$ avec les intensités usuelles, mais s'atténue très fortement aux grands angles. Comme observé pour la distribution de température, le gradient de température n'est significatif qu'au voisinage du plan médian, où il varie peu avec z (figure 4.10 (a)). Une dépendance en ω_0 est visible près du faisceau (figure 4.10 (b)) ; la valeur maximale du gradient de température est inversement proportionnelle à ω_0.

L'écoulement thermocapillaire est la résultante macroscopique d'un effet localisé. On cherche donc à déterminer le gradient de température apparent conduisant à cet effet global. Dans un plan $z = \mathrm{cte}$, ce gradient apparent est la moyenne, sur une longueur d'arc $\mathcal{L}(z)$, du gradient de température :

$$\langle \boldsymbol{\nabla} T \rangle_z = \frac{1}{\mathcal{L}(z)} \int_{\mathcal{L}(z)} (\boldsymbol{\nabla} T)_z \, \mathrm{d}\mathcal{L}(z). \tag{4.24}$$

La longueur $\mathcal{L}(z)$ définit l'arc sur lequel le gradient de température sur l'interface est significatif. On remarque sur l'encart de la figure 4.10 (b) que le gradient azimutal de température dans le plan médian est fortement atténué lorsque la distance au faisceau laser dépasse environ 15 µm. D'autre part, la longueur caractéristique hydrodynamique du système est sa plus petite dimension, soit la hauteur du microcanal (30 µm). Ainsi, l'arc pertinent peut être défini comme l'ensemble des points du ménisque situés à moins d'une demi-hauteur de microcanal de part et d'autre du faisceau laser $\left(r \leqslant \frac{h}{2}\right)$. Notant $\phi_{max} = \phi\left(z, r = \frac{h}{2}\right)$ l'angle polaire correspondant, l'arc total peut ainsi s'écrire

$$\mathcal{L}(z) = R(z) \int_{-\phi_{max}}^{\phi_{max}} \mathrm{d}\phi = 2R(z)\phi_{max} \tag{4.25}$$

compte tenu de la symétrie de la forme du ménisque dans le microcanal. Le gradient de température sur l'interface est connu numériquement pour les valeurs de ϕ positives et déduit par symétrie sur le demi-arc correspondant aux angles négatifs. L'intégrale (4.24) peut alors être approchée par la somme discrète

$$\langle \boldsymbol{\nabla} T \rangle_z \simeq \frac{1}{2\phi_{max}} \sum_{-\phi_{max}}^{\phi_{max}} (\boldsymbol{\nabla} T)_z \, \Delta\phi(z). \tag{4.26}$$

Cette somme est calculée plan par plan, pour z variant de 0 à h par pas de $\frac{h}{100}$. Dans chaque plan, le gradient de température résultant est orienté suivant x par raison de symétrie. Sa variation avec z est représentée sur l'encart de la figure 4.10 (a).

Le gradient résultant sur l'épaisseur du microcanal est ensuite obtenu en calculant la moyenne des valeurs du gradient résultant calculé dans chaque plan, chaque valeur étant pondérée par le nombre de termes que compte la somme dont elle résulte. Ainsi, le poids statistique des plans proches du plan médian, pour lesquels de nombreux points du ménisque vérifient $r \leqslant \frac{h}{2}$, est plus important que celui des plans proches des parois, où le ménisque est assez loin du faisceau. Une approche analogue moyennant les effets hydrodynamiques sur l'épaisseur a été employée pour déterminer les champs de vitesse associés à un effet Marangoni en cellule de Hele-Shaw [171–173].

TAB. 4.1 – *Gradient de température moyen sur l'épaisseur h d'un microcanal, normalisé par la puissance laser, pour différents rayons au col. Les deux microcanaux considérés ont pour hauteur $h = 30$ et 50 µm, et pour largeur $w_d = 200$ et 100 µm respectivement.*

ω_0	1,42	2,85	5,52	9,61	µm
$h = 30$ µm	3,03	2,89	2,58	2,01	10^{-3} K · µm^{-1} · mW^{-1}
$h = 50$ µm	6,09	5,97	5,69	5,13	

Les valeurs du gradient de température moyen ainsi calculé pour les différents rayons au col sont répertoriées pour deux microcanaux de géométrie différente dans le tableau 4.1. On observe ainsi que le gradient de température moyen dépend faiblement du rayon au col du faisceau. Cette dépendance est atténuée sur le canal le plus épais car dans ce cas, la longueur caractéristique associée aux conditions aux limites du calcul de température est plus grande.

On peut ainsi représenter les vitesses thermocapillaires figurant sur la figure 4.6 en fonction du gradient de température moyen (figure 4.11). Les données se regroupent toutes sur une droite unique passant par l'origine, confirmant que la dépendance en ω_0 s'inclut dans celle du gradient de température. Ce comportement commun illustre la pertinence d'une approche analogue à celle correspondant au cas d'un gradient de température macroscopique (chapitre 2).

Une étude numérique [173] de la force thermocapillaire exercée sur une goutte par un champ de température gaussien en cellule de Hele-Shaw conduit à un comportement linéaire en ω_0, en contradiction avec les résultats expérimentaux. Cependant, cette dépendance est vraisemblablement liée à la forme de la distribution de température réelle, qui s'écarte significativement de l'enveloppe gaussienne hors de l'axe du faisceau (encart de la figure 4.9 (b)).

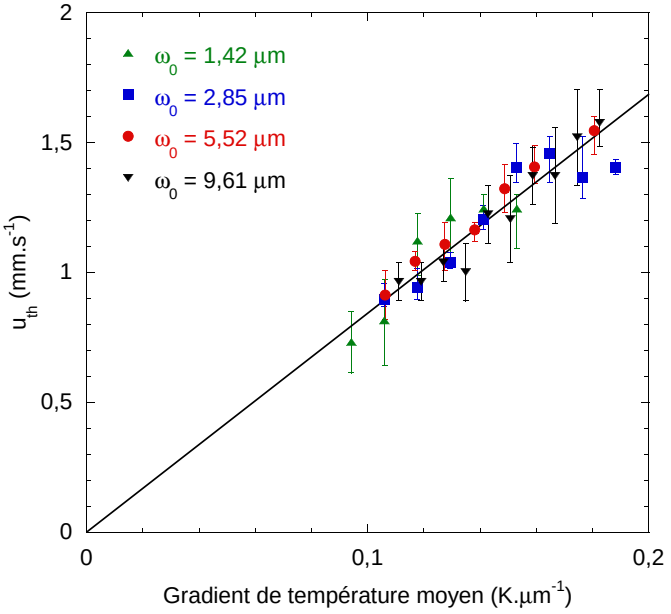

FIG. 4.11 – *Vitesses thermocapillaires déduites des mesures des vitesses de ménisque pour différentes puissances et rayon au col (données représentées sur la figure 4.6), représentées en fonction du gradient de température moyen sur le ménisque.*

4.2.3 Dépendance géométrique

Nous avons vu (section 2.1.3) que la vitesse thermocapillaire d'une goutte confinée soumise à un gradient de température d'extension grande devant la taille de la goutte s'écrit sous la forme

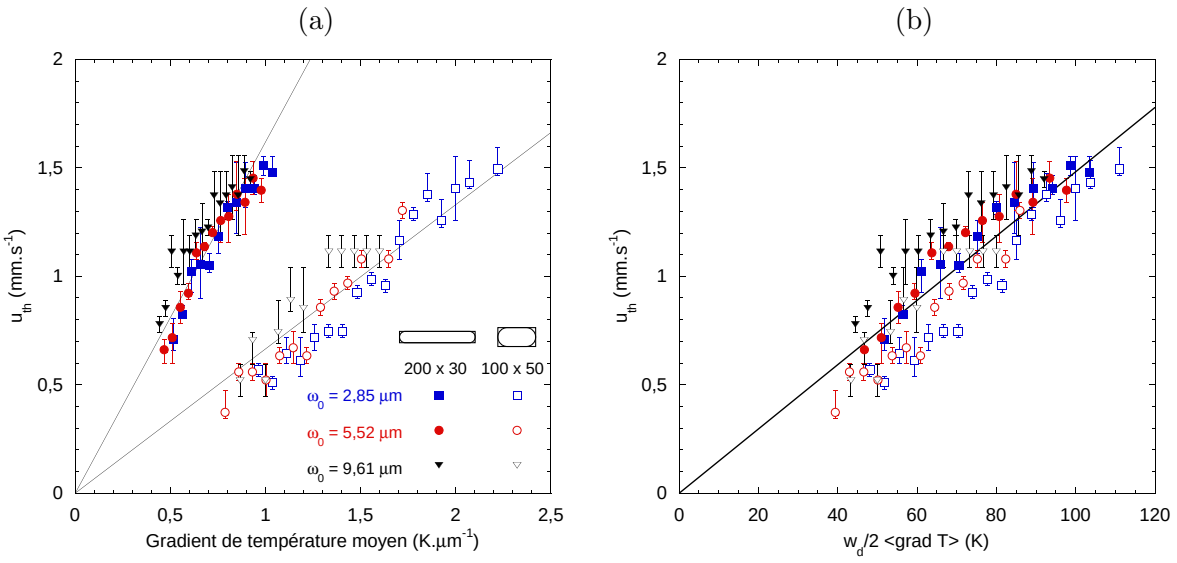

FIG. 4.12 – *Vitesses thermocapillaires mesurées sur une solution de colorant alimentaire* E122 *dans deux microcanaux différents* $((h, w_d) = (30, 200)$ *ou* $(50, 100)$ µm*, pour trois rayons au col. Ces données sont tracées en fonction* (a) *du gradient de température moyen, et* (b) *du produit du gradient de température moyen par la demi-largeur du microcanal. Les valeurs du gradient de température ont été obtenues à partir du calcul détaillé dans la section* 4.2.2*, avec la valeur d'absorption mesurée.*

$\mathbf{u}_{th} \sim -\ell \frac{\partial \sigma}{\partial T} \boldsymbol{\nabla} T$, faisant intervenir une longueur ℓ caractéristique du problème considéré. En géométrie de Hele-Shaw, où le confinement n'intervient que dans une dimension, la migration thermocapillaire résulte de l'écoulement du fluide externe autour de la goutte. La longueur caractéristique ℓ est alors le rayon de la goutte (figure 2.3 et références [145, 146]), comme dans le cas d'une goutte non confinée.

Lorsque la goutte est allongée du fait d'un confinement en deux dimensions, par exemple dans un capillaire rectangulaire, les références [147–149] montrent que la taille caractéristique est la dimension la plus confinante. La migration thermocapillaire résulte principalement de l'écoulement du fluide externe dans les coins, et la vitesse thermocapillaire est ainsi indépendante de la taille de la goutte.

Dans notre configuration expérimentale, les gouttes sont confinées en deux dimensions du fait de l'existence des quatre parois du microcanal. Cependant, le gradient de tension interfaciale, induit par le gradient de température, s'atténue rapidement avec la distance au faisceau laser et n'atteint des valeurs significatives que sur les angles $\phi < 30^\circ$ (figure 4.10). Il est pratiquement nul au voisinage des parois verticales. On peut donc s'attendre à ce que la migration thermocapillaire résulte principalement d'un écoulement du fluide externe autour du ménisque, et non dans les coins.

Pour vérifier cette dépendance géométrique, nous avons mesuré des vitesses thermocapillaires dans deux microcanaux de largeur et hauteur différentes : l'un a une hauteur de 30 µm et une largeur de 200 µm, l'autre une hauteur de 50 µm pour une largeur de 100 µm. Ces deux canaux ont donc une section $w_d \times h$ voisine, permettant des vitesses moyennes d'écoulement comparables à conditions d'injection données, mais des rapports d'aspect $\varphi = \frac{w_d}{h}$ différents.

Ces mesures ont été réalisées avec une solution de colorant alimentaire E122, dont les propriétés optiques d'intérêt sont décrites dans l'annexe D. Les valeurs du gradient de température ont été obtenues en remplaçant dans le calcul décrit dans la section 4.2.2 l'absorption de l'uranine par celle que nous avons mesurée pour E122. Comme mentionné dans l'annexe D, l'absorption calculée conduit à des valeurs d'échauffement manifestement erronées : les valeurs du gradient de température sont donc fausses. Cependant, cette erreur d'amplitude ne remet pas en cause le comportement d'échelle du gradient de température vis-à-vis des différents paramètres ex-

périmentaux (puissance laser, rayon au col du faisceau, géométrie du canal). Les données expérimentales peuvent donc être comparées au niveau quantitatif pour un colorant donné, et le comportement géométrique observé peut être étendu à d'autres systèmes.

Les mesures de vitesse thermocapillaire (figure 4.12 (a)) montrent que le gradient de température nécessaire pour atteindre une vitesse donnée est deux fois plus grand pour le canal le plus étroit que pour le canal deux fois plus large. Ainsi, à gradient de température donné, la vitesse thermocapillaire varie comme la largeur du microcanal ; de façon équivalente, la vitesse thermocapillaire est proportionnelle au produit $w_d \boldsymbol{\nabla} T$, comme représenté sur la figure 4.12 (b). Ce comportement est manifestement incompatible avec celui décrit pour un écoulement thermocapillaire en capillaire piloté par un gradient de température dont l'extension est grande devant celle du capillaire [147–149]. Le rayon du ménisque étant imposé par la largeur du canal, $R = \frac{w_d}{2}$, cette observation confirme que l'écoulement thermocapillaire induit par laser se comporte plutôt comme dans une configuration de type Hele-Shaw.

Dans cette section, nous avons montré que la vitesse thermocapillaire peut être décrite dans notre configuration — goutte confinée et chauffage localisé — de façon analogue au cas d'une goutte en cellule de Hele-Shaw en présence d'un gradient de température macroscopique. On peut ainsi écrire

$$\mathbf{u}_{th} \propto -R \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)_{\mathit{eff}} \boldsymbol{\nabla} T. \tag{4.27}$$

Cette détermination nous permet d'appréhender le phénomène de blocage thermocapillaire illustré au début de ce chapitre.

4.3 Blocage thermocapillaire

Nous avons vu aux sections précédentes que l'effet thermocapillaire permet d'interrompre la vitesse axiale du ménisque de manière temporaire. Cette interruption résulte d'un équilibre entre les forces imposées à la goutte par l'écoulement de base et la force thermocapillaire. L'objet de cette section est donc d'appréhender, à partir d'un équilibre des forces simplifié, le phénomène de blocage thermocapillaire.

4.3.1 Bilan des forces

On considère une goutte en cours de formation, dont l'écoulement est interrompu par le faisceau laser, comme le représente la figure 4.13. Comme on l'a vu à la section 4.1.1, ce volume de fluide est caractérisé par l'existence d'un cou, où se produit la rupture de l'interface au moment de la formation de la goutte. Ce cou constitue donc une délimitation pertinente de notre objet d'étude, que l'on appellera — abusivement — « goutte » dans la suite. Par ailleurs, durant le blocage, l'huile s'écoule sur les côtés de la goutte à travers un interstice de largeur δ, et également dans les films de mouillage, ignorés ici.

Les forces s'appliquant sur la goutte, représentées sur la figure 4.13, sont les suivantes :
- la force de pression imposée par l'eau en amont, $\mathbf{F}_{\Delta p}$;
- la force imposée par le cisaillement visqueux de l'huile sur l'interface, $\mathbf{F}_{visq}$;
- la force imposée par la surpression d'huile du fait de l'obstruction du canal, $\mathbf{F}_{obs}$;
- la force capillaire, $\mathbf{F}_{cap}$;
- la force thermocapillaire, $\mathbf{F}_{th}$.

Les deux dernières forces contribuent à retenir la goutte au niveau du spot laser, les trois premières à l'en dégager.

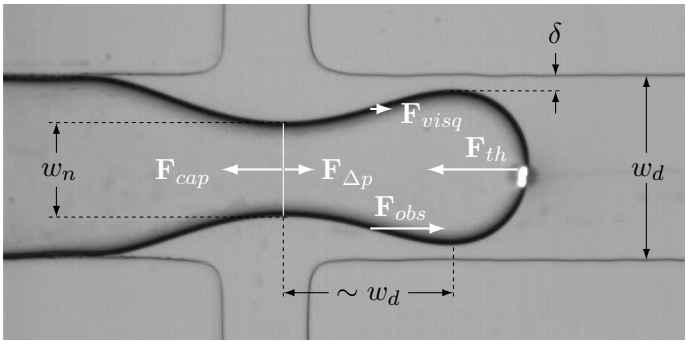

Fig. 4.13 – *Définition des forces impliquées dans le blocage thermocapillaire.*

Force de pression

La force de pression provient de l'écart de pression Δp entre l'amont et l'aval de la goutte. Cet écart est particulièrement sensible au trafic de gouttes dans le microcanal [174], il est ainsi difficile à estimer. La force correspondante s'applique sur une section S de fluide,

$$F_{\Delta p} = S\Delta p. \tag{4.28}$$

Cette force a pour effet principal de modifier la forme de l'interface de la goutte. Tant que l'interface est déformable, elle s'adapte ainsi aux fluctuations de pression. En revanche, lorsque la forme de l'interface est contrainte, par exemple si le laser est positionné en amont du canal de l'huile, les fluctuations de pression s'opposent directement à la force thermocapillaire, diminuant l'efficacité du blocage.

On peut en outre estimer l'ordre de grandeur de la surpression dans l'eau en amont de l'embranchement. Dans l'hypothèse d'un ménisque statique, celle-ci correspond à la pression de Laplace,

$$\Delta p \simeq 2\left(\frac{1}{w_d} + \frac{1}{h}\right)\sigma \simeq 0{,}4 \text{ kPa}. \tag{4.29}$$

La force qui s'exerce sur une tranche d'eau de section $w_d h$ est donc de l'ordre de 2 µN.

Force visqueuse

La force de cisaillement visqueux imposée à une surface S sous l'effet d'un gradient de vitesse $\frac{U_c}{\ell}$ s'écrit, d'après la relation (1.5),

$$F_{visq} \sim \eta_c \frac{U_c}{\ell} S. \tag{4.30}$$

On considère ici la force s'appliquant sur la face arrière de la goutte, dont la surface totale est $S \simeq 2hw_d$. La longueur caractéristique ℓ intervenant dans le gradient de vitesse est typiquement la largeur de l'interstice, et la vitesse peut s'écrire comme le rapport du débit Q_{int} à travers la section de l'interstice, $2h\delta$, à cette même section. La force visqueuse s'écrit ainsi

$$F_{visq} \sim \eta_c \frac{w_d}{\delta^2} Q_{int}, \tag{4.31}$$

et on retrouve l'expression (1.17) proposée par Garstecki et coll. [21] pour décrire la formation des gouttes en géométrie à écoulement croisé (section 1.1.3). Lorsque le débit d'huile est imposé, le débit à travers l'interstice est le débit Q_c de consigne.

Force d'obstruction

L'obstruction partielle, sur une longueur L, du microcanal lors de la formation de la goutte augmente sa résistance hydrodynamique. La pression de l'huile sur la goutte peut alors être calculée à partir de la relation débit-pression (1.23). Ainsi, pour un interstice de section $h\delta$, tel que $\delta < h$, à travers lequel s'écoule un débit $\frac{Q_{int}}{2}$ d'huile,

$$\Delta p \simeq 12\,\eta_c \frac{L}{h\delta^3}\frac{Q_{int}}{2}, \tag{4.32}$$

qui peut s'écrire $\Delta p \simeq \mathcal{R}\frac{Q_{int}}{2}$, avec $\mathcal{R} = 12\,\eta_c \frac{L}{h\delta^3}$ la résistance hydrodynamique [1] imposée par l'obstruction. Notre configuration comporte deux obstructions identiques en parallèle, dont la longueur est de l'ordre de w_d : la pression s'écrit ainsi

$$\Delta p \sim 6\,\eta_c \frac{w_d}{h\delta^3} Q_{int}, \tag{4.33}$$

et la force s'appliquant sur la face arrière de la goutte est

$$F_{obs} = S\Delta p \sim 12\,\eta_c \frac{w_d^2}{\delta^3} Q_{int}. \tag{4.34}$$

Cette force a la même forme que l'expression (1.16).

Contrairement à la force visqueuse qui résulte de l'existence d'un gradient de vitesse au sein du fluide, la force d'obstruction résulte d'une modulation de résistance hydrodynamique. La réponse de l'écoulement de l'huile à une telle modification est différente selon qu'il est imposé en débit ou en pression. Dans le premier cas, le débit d'huile à travers l'interstice est imposé par le débit de consigne ($Q_{int} = Q_c$) : la pression, et ainsi la force d'obstruction, augmentent avec la résistance hydrodynamique. Dans le second cas, la pression fixée impose la force à laquelle est soumise la goutte, le débit dans l'interstice diminue lorsque la résistance hydrodynamique augmente.

Force capillaire

La force capillaire, qui s'oppose à la création d'interface, retient l'avancée de la goutte. Sa valeur est donnée par le produit de la tension interfaciale par le périmètre au niveau du cou,

$$F_{cap} \simeq 2\,(w_n + h)\,\sigma, \tag{4.35}$$

avec w_n la largeur apparente du cou

Force thermocapillaire

Enfin, la force thermocapillaire est proportionnelle au gradient de température sur l'interface. Elle varie donc avec la position du ménisque par rapport au faisceau laser :

- Lorsque le ménisque est en amont du faisceau, ou que le faisceau est totalement réfléchi sur l'interface, l'eau n'est pas chauffée aux effets d'ondes évanescentes près. La force thermocapillaire est nulle.
- Lorsque le ménisque est légèrement en aval du faisceau, de sorte que celui-ci se trouve en incidence normale, la transmission dans l'eau est maximale, conduisant à un fort échauffement local. Cependant, le gradient de température sur le ménisque est très faible, et décroît à mesure que le ménisque s'en éloigne.

La position de force maximale correspond donc à un compromis entre moindre échauffement du fait des effets de courbure et moindre gradient de température du fait de l'éloignement au faisceau.

1. En toute rigueur, ce terme doit être divisé par la masse volumique de l'huile pour correspondre à la résistance hydrodynamique telle qu'elle est définie usuellement.

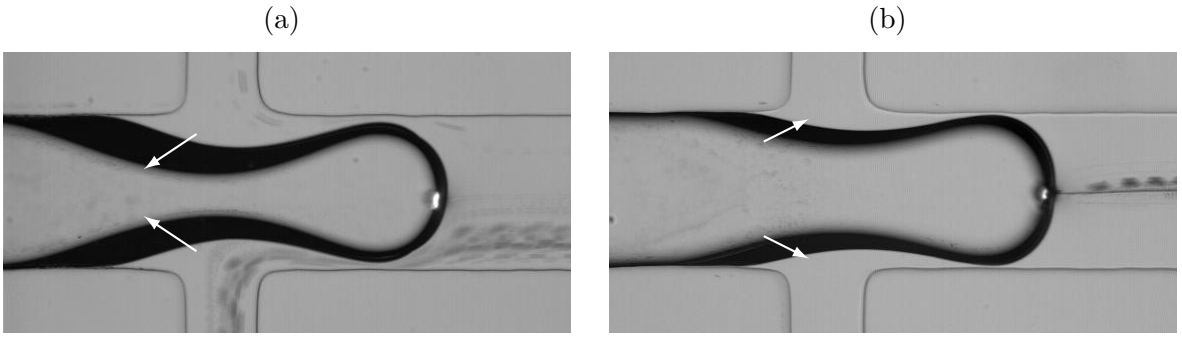

Fig. 4.14 – *Superposition d'images pendant la durée du blocage thermocapillaire de gouttes dans le cas d'un pompage* (a) *en pression et* (b) *en débit, avec les valeurs de consigne indiquées dans le texte. L'évolution de la forme de l'interface au cours du temps est figurée par les flèches. Pour ces deux images,* $P = 87$ mW *et* $\omega_0 = 2{,}58$ µm.

Équilibre

Parmi les forces présentées dans cette section, certaines peuvent être négligées.

La force de pression conduit, comme on l'a vu, à la déformation de l'interface. De ce fait, elle sera prise en compte, à travers la dynamique d'évolution du cou et de la largeur de l'obstruction, dans l'expression des forces F_{visq}, F_{obs} et F_{cap}.

Le rapport entre les deux forces imposées par l'écoulement d'huile, F_{obs} et F_{visq},

$$\frac{F_{obs}}{F_{visq}} \sim 12\,\frac{w_d}{\delta}, \tag{4.36}$$

montre que la force d'obstruction dépasse la force visqueuse de plus d'un ordre de grandeur lorsque l'interstice est petit devant la largeur du canal. Ainsi, on négligera la force visqueuse devant la force d'obstruction.

Dans ce cas, l'équilibre des forces au cours du blocage peut s'écrire :

$$\mathbf{F}_{obs} + \mathbf{F}_{cap} + \mathbf{F}_{th} = \mathbf{0}. \tag{4.37}$$

Cet équilibre prend fin à l'instant $t = \tau_b$ où le ménisque est libéré. On cherche donc à faire apparaître les dépendances temporelles des forces, pour écrire le bilan des forces à cet instant τ_b.

4.3.2 Évolution temporelle des forces

Les trois forces intervenant dans l'équilibre sont susceptibles de varier :
- la force thermocapillaire varie avec la position du ménisque ;
- la force d'obstruction varie avec la pression d'huile qui, si elle n'est pas imposée, dépend de la résistance hydrodynamique : elle varie alors avec la largeur de l'interstice ;
- la force capillaire varie avec le périmètre du cou.

Les deux dernières forces dépendant de la nature de l'écoulement, on distingue les situations où le pompage est imposé en pression ou en débit. La figure 4.14 représente l'évolution de la géométrie de l'interface dans ces deux situations.

Force thermocapillaire

La force thermocapillaire varie avec la position du ménisque, comme discuté plus haut. On peut néanmoins remarquer que l'amplitude de cette force doit être maximale à la fin du blocage : une perturbation éloignant le ménisque de cette position sera moins compensée par la suite. Cette valeur particulière de la force thermocapillaire ne dépend que du gradient de température :

$$F_{th}(t = \tau_b) = \beta \nabla T \tag{4.38}$$

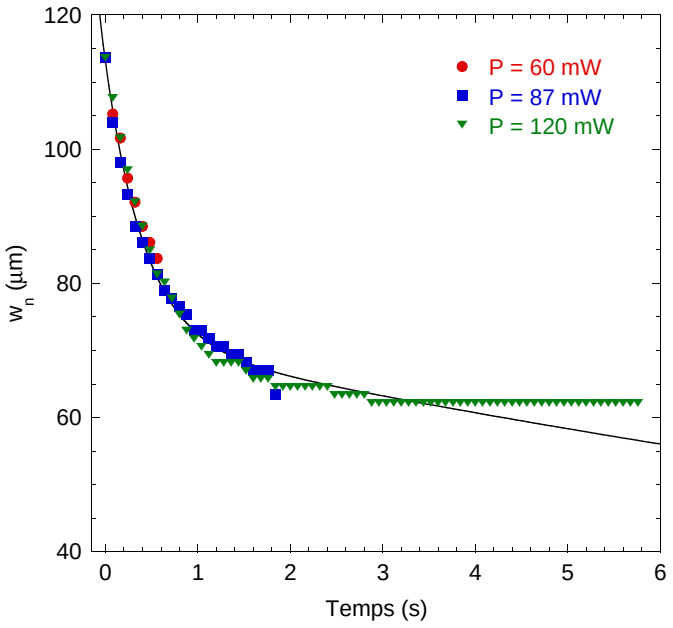

FIG. 4.15 – *Évolution temporelle de la largeur du cou pendant la durée d'un blocage thermocapillaire, pour un pompage en pression. Trois puissances laser sont considérées, avec* $\omega_0 = 2{,}58$ µm. *La ligne continue est une interpolation de la forme* (4.39).

avec β une constante de proportionnalité et ∇T la norme du gradient de température moyen calculée précédemment.

Injection en pression

On considère ici un écoulement où la pression dans chaque phase est imposée par la gravité. Compte tenu des hauteurs de fluide respectives, on a $\Delta p_c = 3\,928$ Pa et $\Delta p_d = 3\,897$ Pa. Dans ces conditions, la forme de l'interface évolue comme représenté sur la figure 4.14 (a) : durant le blocage, le cou se resserre notablement, l'huile refluant partiellement dans le canal de l'eau. La forme du ménisque évolue peu par ailleurs.

La largeur apparente du cou est représentée pour trois gouttes, à différentes puissances laser, sur la figure 4.15. La dynamique d'évolution du cou est indépendante de la puissance laser. L'amincissement observé, initialement rapide, ralentit après environ 0,3 s. Sur des temps plus longs (au-delà de 4 s), l'amincissement semble saturer. Avant cette saturation, l'amincissement du cou peut être décrit empiriquement par une loi biexponentielle, représentée sur la figure, de la forme

$$w_n(t) = w_{n,1}\,\mathrm{e}^{-t/\tau_1} + w_{n,2}\,\mathrm{e}^{-t/\tau_2}, \tag{4.39}$$

avec $w_{n,1} + w_{n,2} = 113$ µm la largeur initiale du cou. Les temps caractéristiques issus de l'ajustement sont typiquement $\tau_1 \simeq 0{,}4$ s et $\tau_2 \simeq 25$ s. Ainsi, on s'attend à voir la force capillaire diminuer au cours du temps, suivant la dynamique d'évolution du cou.

La durée du blocage étant généralement grande devant τ_1, le comportement en fin de blocage est plutôt déterminé par le temps caractéristique τ_2. On peut ainsi considérer que la force capillaire évolue de façon exponentielle :

$$F_{cap}(t \gg \tau_1) \simeq 2\left(w_{n,0}\,\mathrm{e}^{-t/\tau} + h\right)\sigma \tag{4.40}$$

avec $w_{n,0} \simeq w_{n,2} = 71$ µm la largeur du cou tenant compte du premier rétrécissement, et $\tau \simeq \tau_2$ le temps caractéristique de l'exponentielle.

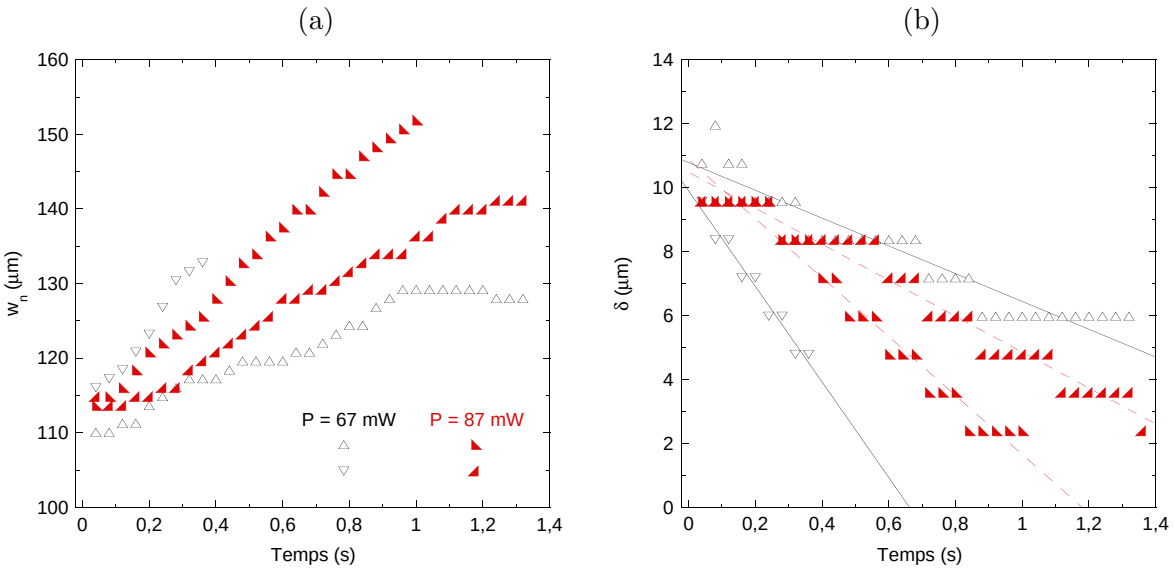

Fig. 4.16 – *Évolution temporelle des longueurs pertinentes (largeurs* (a) *du cou et* (b) *de l'interstice) sur quatre gouttes différentes pendant la durée d'un blocage thermocapillaire, dans le cas d'un pompage en débit. La puissance laser est* $P = 67$ mW *(symboles ouverts),* 87 mW *(symboles pleins), et* $\omega_0 = 2{,}58$ µm.

D'autre part, la pression étant imposée constante, la force d'obstruction doit l'être aussi. Ainsi, au cours du blocage, les forces capillaire et thermocapillaire évoluent de façon opposée.

Injection en débit

On considère maintenant le cas d'une injection en débit, avec $Q_c = 0{,}6$ µL · min^{-1} pour l'huile et $Q_d = 0{,}12$ µL · min^{-1} pour l'eau. On observe cette fois un gonflement de l'interface, comme représenté sur la figure 4.14 (b). L'évolution de la largeur du cou, mesurée sur 4 gouttes pour deux puissances laser différentes, est représentée sur la figure 4.16 (a). On observe une évolution régulière, mais non reproductible d'une goutte à l'autre. La largeur du cou augmente d'environ 30 % au maximum au cours du blocage. Il en résulte une augmentation de la force capillaire de l'ordre de 20 %.

L'évolution de l'interstice sur ces mêmes gouttes est représenté sur la figure 4.16 (b). Comme pour la largeur du cou, les mesures diffèrent d'une goutte à l'autre. La tendance commune est une décroissance régulière, compatible avec un comportement empirique simple de la forme

$$\delta(t) = \delta_0 - \gamma t \tag{4.41}$$

avec $\delta_0 \simeq 10$ µm la largeur initiale de l'interstice, et γ sa vitesse d'obstruction. Cette vitesse varie entre 4 et 15 µm · s^{-1} sur les gouttes mesurées.

La force d'obstruction s'écrit donc

$$F_{obs} \sim 12\,\eta_c \frac{w_d^2}{(\delta_0 - \gamma t)^3} Q_c = \frac{K}{(\delta_0 - \gamma t)^3}. \tag{4.42}$$

La largeur de l'interstice diminue typiquement d'un facteur 2 à 3 sur la durée du blocage. Il en résulte une augmentation de la force d'obstruction d'un facteur 10 à 30. On néglige ainsi, dans un premier temps, la variation de la force capillaire devant celle de la force d'obstruction, afin de simplifier l'expression du bilan des forces. La pertinence de cette simplification sera discutée plus loin.

Bilan

L'équilibre des forces s'écrit donc, à l'instant $t = \tau_b$,

$$F_{th} + F_{cap} - F_{obs} = 0 \simeq \begin{cases} \beta\nabla T + 2\left(w_{n,0}\,\mathrm{e}^{-\tau_b/\tau} + h\right)\sigma - F_{obs} & \text{en pression,} \\ \beta\nabla T + 2\left(w_n + h\right)\sigma - \frac{K}{\left(\delta_0 - \gamma\tau_b\right)^3} & \text{en débit.} \end{cases} \tag{4.43}$$

On peut ainsi établir une relation entre le temps de blocage, τ_b, et ∇T.

4.3.3 Temps de blocage

Le temps de blocage a été mesuré sur plusieurs gouttes, pour différentes puissances et différents rayons au col. Ces mesures sont représentées sur la figure 4.17 (a) pour un pompage en pression, et sur la figure 4.17 (b) pour un pompage en débit. Les valeurs représentées sont la moyenne des temps de blocage mesurés à conditions données, l'incertitude est prise égale à l'écart-type.

Dans les deux cas considérés, on observe que le blocage se produit lorsque la puissance laser dépasse une valeur seuil, voisine de 50 mW. Au-delà de ce seuil, la durée du blocage augmente avec la puissance laser, d'autant plus que le rayon au col est petit.

Ces données peuvent être représentées en fonction du gradient de température moyen (figure 4.18). On observe alors un regroupement des données sur un comportement commun, qui confirme que le gradient de température moyen est un paramètre de contrôle du phénomène de blocage thermocapillaire. On cherche alors à ajuster ces données par une relation entre τ_b et ∇T. L'équilibre des forces (4.43) conduit à

$$\tau_b \simeq \tau \ln\left(\frac{2\sigma w_{n,0}}{F_{obs} - 2\sigma h - \beta\nabla T}\right) \tag{4.44}$$

en pression, et à

$$\tau_b \simeq \frac{1}{\gamma}\left(\delta_0 - \left(\frac{K}{2\left(w_n + h\right)\sigma + \beta\nabla T}\right)^{\frac{1}{3}}\right) \tag{4.45}$$

en débit.

Injection en pression

Un ajustement des données expérimentales par la relation (4.44) est représenté sur la figure 4.18 (a). Les valeurs de F_{obs} et β sont laissées en paramètres ajustables, celles des autres paramètres sont imposées à partir des valeurs connues. L'ajustement conduit ainsi à $F_{obs} = 1{,}1$ µN et $\beta = 0{,}63$ µN · µm · K^{-1}.

La force thermocapillaire est donc typiquement de l'ordre de 0,1 µN dans nos conditions expérimentales. Cet ordre de grandeur est en accord avec les récentes estimations théorique [173] et expérimentale [161] de Baroud et coll.

D'autre part, la force thermocapillaire est inférieure d'un ordre de grandeur à la force de pression en amont de l'embranchement. Cela peut expliquer pourquoi nous n'y avons jamais observé de manière robuste le phénomène de blocage thermocapillaire.

Injection en débit

Les données expérimentales en débit sont ensuite ajustées avec la relation (4.45). La valeur de β déterminée dans le cas d'un pompage en pression est imposée, ainsi que celle de la force capillaire. Le terme K intervenant dans l'expression de la force d'obstruction est laissé en paramètre libre.

Un ajustement satisfaisant des données expérimentales n'a pu être obtenu avec les valeurs de γ et δ_0 mesurées. L'ajustement représenté sur la figure 4.18 (b) a été réalisé en fixant $\delta_0 = 15$ µm

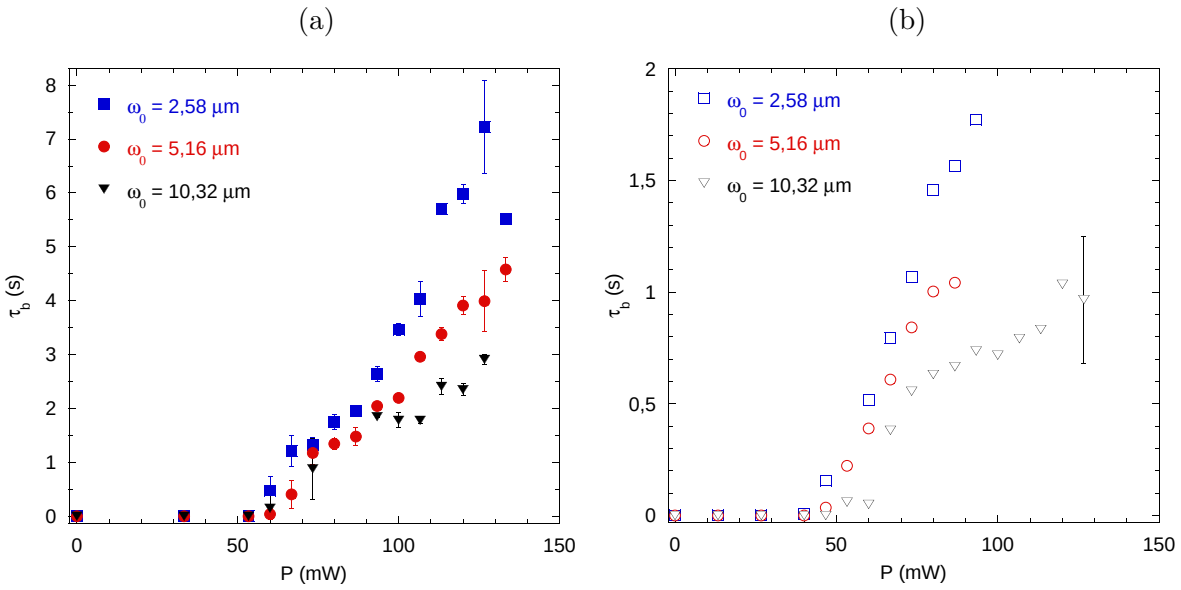

Fig. 4.17 – *Temps de blocage mesurés sur une succession de gouttes, représentés en fonction de la puissance laser, pour un pompage* (a) *en pression ou* (b) *en débit.*

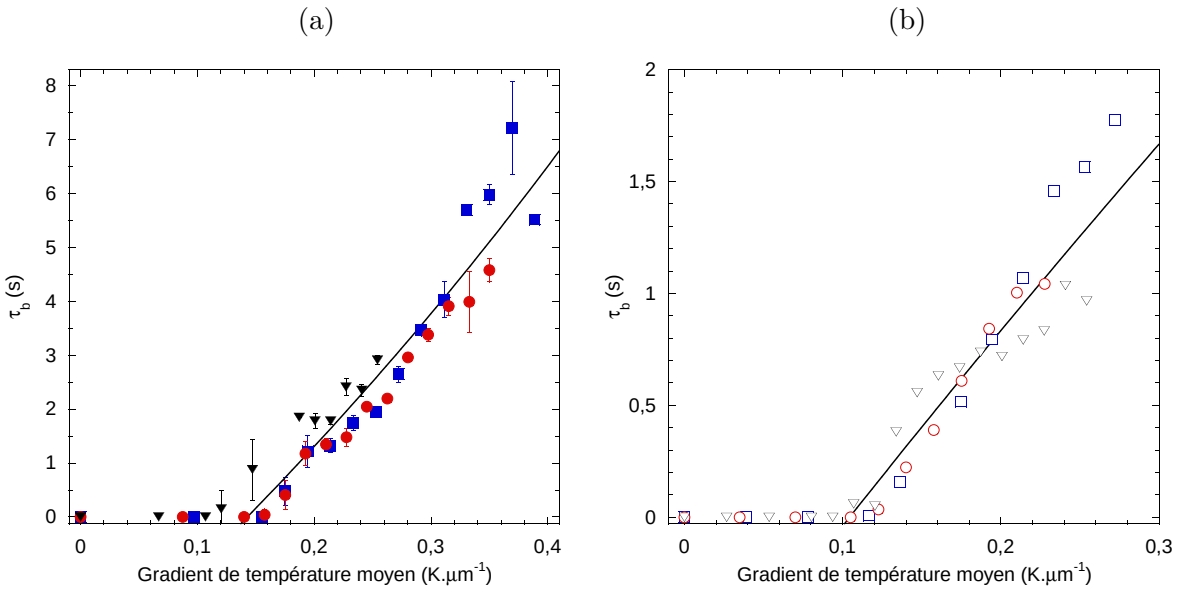

Fig. 4.18 – *Temps de blocage représenté en fonction du gradient de température moyen.* (a) *Données en pression ; la ligne continue est un ajustement par l'expression* (4.44). (b) *Données en débit ; la ligne continue est un ajustement par l'expression* (4.45). *Les symboles sont les mêmes que sur la figure* 4.17.

et $\gamma = 0{,}2\ \mu\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}$.

La valeur de δ_0 choisie est surestimée par rapport à la valeur mesurée, tout en restant dans le même ordre de grandeur. Cependant, la relation débit-pression à la base de l'équilibre des forces est celle d'un canal parallélépipédique de section $\delta \times h$. Cette section correspond au minimum de celle de l'obstruction réelle, qui n'est pas constante sur sa longueur. Ainsi, si l'obstruction est assimilée à un canal parallélépipédique, sa largeur doit être plus grande que δ_0.

La vitesse d'obstruction fixée diffère de la valeur mesurée de plus d'un ordre de grandeur. Rappelons cependant que la relation (4.45) a été écrite en considérant, dans un but de simplification, la force capillaire constante. Peut-on attribuer cet écart à la dépendance temporelle de la force capillaire ?

L'évolution du cou mesurée (figure 4.16 (a)) est compatible avec une loi de variation affine,

$$w_n(t) = w_{n,0} + vt, \tag{4.46}$$

avec $w_{n,0} \simeq 110\ \mu\mathrm{m}$ et v compris entre 20 et 50 $\mu\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}$ pour les mesures représentées. Si on inclut cette dépendance temporelle dans l'expression de l'équilibre des forces, celui-ci s'écrit sous la forme d'un polynôme d'ordre 4 en τ_b :

$$-2\frac{v}{\delta_0}\gamma^3\tau_b^4 + \gamma^2\left(6v - \tilde{F}\gamma\right)\tau_b^3 - 3\delta_0\gamma\left(2v - \tilde{F}\gamma\right)\tau_b^2 + \delta_0^2\left(2v - 3\tilde{F}\gamma\right)\tau_b + \delta_0^3\tilde{F} - \frac{K}{\sigma\delta_0} = 0, \tag{4.47}$$

avec $\tilde{F} = \frac{F_{th}+F_{cap}(t=0)}{\sigma\delta_0}$. Pour les temps correspondant aux données expérimentales, $\tau_b < 2$ s (figure 4.18 (b)), le terme d'ordre 4 est petit devant les autres termes et peut être négligé. On obtient ainsi un polynôme d'ordre 3, qui se réduit à celui obtenu en imposant la force capillaire constante — dont la racine réelle est (4.45) — si $v = 0$. Chaque coefficient de ce polynôme comporte un terme pondéré par la vitesse d'obstruction, γ, et un terme pondéré par la vitesse de croissance du cou, v, qui lui est opposé. On peut ainsi récrire ce polynôme sous la forme

$$-\tilde{\gamma_1}\gamma^2\tilde{F}\tau_b^3 + 3\tilde{\gamma_2}\gamma\delta_0\tilde{F}\tau_b^2 - 3\tilde{\gamma_3}\delta_0^2\tilde{F}\tau_b + \delta_0^3\tilde{F} - \frac{K}{\sigma\delta_0} = 0 \tag{4.48}$$

faisant apparaître une « vitesse d'obstruction corrigée »

$$\tilde{\gamma_1} = \gamma - 6\frac{v}{\tilde{F}}, \qquad \tilde{\gamma_2} = \gamma - 2\frac{v}{\tilde{F}}, \qquad \tilde{\gamma_3} = \gamma - \frac{2}{3}\frac{v}{\tilde{F}}. \tag{4.49}$$

Les racines de ce polynôme peuvent s'écrire sous une forme comparable à (4.45), avec une vitesse d'obstruction corrigée au dénominateur.

La valeur de la force thermocapillaire intervenant dans $\tilde{F}$ peut être évaluée à partir de l'estimation obtenue pour un pompage en pression. La correction $\frac{v}{\tilde{F}}$ apportée à la vitesse d'obstruction est ainsi de l'ordre de 2 $\mu\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}$ pour $v \simeq 30\ \mu\mathrm{m}\cdot\mathrm{s}^{-1}$. La correction à la vitesse d'obstruction est alors comparable à la valeur de la vitesse d'obstruction mesurée. La dépendance temporelle de la force capillaire, ignorée dans l'expression utilisée pour l'ajustement, peut ainsi être à l'origine de l'écart observé entre la valeur de la vitesse d'obstruction tirée de l'ajustement et celle mesurée.

La valeur du paramètre ajustable obtenue est $K = 5\,959\ \mu\mathrm{N}\cdot\mu\mathrm{m}^3$. Ce paramètre provient de l'expression de la force d'obstruction, écrite à partir de la relation débit-pression : $K \lesssim 12\,\eta_c w_d^2 Q_c$, l'inégalité provenant de l'idéalisation de la géométrie. Dans les conditions expérimentales considérées, $12\,\eta_c w_d^2 Q_c = 16\,035\ \mu\mathrm{N}\cdot\mu\mathrm{m}^3$. La valeur trouvée est dans le même ordre de grandeur. De plus, cette force n'est pas orientée exclusivement dans l'axe de l'écoulement : sa projection sur cet axe est donc nécessairement plus petite que la valeur calculée. L'accord d'ordre de grandeur est ainsi satisfaisant.

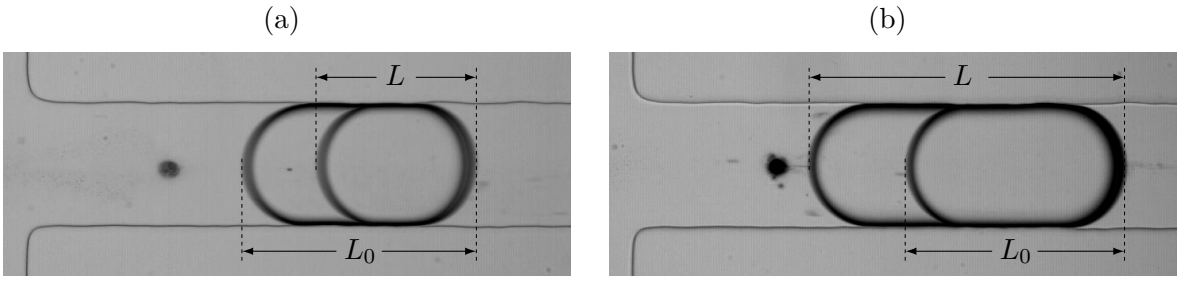

Fig. 4.19 – *Superposition de deux images comparant les gouttes formées laser éteint (longueur L_0) ou après un blocage (longueur L).* (a) *Pression imposée,* (b) *débits imposés. Pour ces deux images,* $P = 87$ mW *et* $\omega_0 = 2{,}58$ µm.

4.3.4 Taille des gouttes obtenues

Si l'effet thermocapillaire permet d'interrompre l'écoulement, réduisant la fréquence d'émission des gouttes, on observe aussi une modification de la taille des gouttes formées. La figure 4.19 compare ainsi des gouttes formées après un blocage thermocapillaire et des gouttes formées laser éteint, pour un écoulement en pression (figure 4.19 (a)) ou en débit (figure 4.19 (b)). Les conditions d'écoulement choisies permettent la formation de gouttes de taille L_0 voisine dans les deux cas (ici $L_0 = 355$ µm en pression, 334 µm en débit). On observe en revanche que le blocage conduit à un effet antagoniste. En pression, les gouttes formées à l'issue du blocage sont plus petites ($L = 240$ µm) que les gouttes formées en l'absence de laser ; en débit, elles sont plus grandes ($L = 480$ µm).

La figure 4.20 (a) représente la longueur moyenne des gouttes, à puissance laser et rayon au col donnés, normalisée par la longueur moyenne lorsque le laser est éteint. Les données correspondent aux gouttes produites en pression (représentées en symboles pleins) ou en débit (symboles ouverts), et sont représentées en fonction de la puissance laser, pour différentes valeurs de ω_0. Aux petites puissances ($P \lesssim 50$ mW), inférieures au seuil de blocage, la longueur des gouttes ne varie pas significativement et reste égale à L_0, en débit comme en pression. Au-delà, les comportements se singularisent. En pression, la taille des gouttes diminue abruptement d'environ 30 % et se stabilise à ce niveau sur toute la gamme de puissances étudiée. Aucune tendance en ω_0 ne se distingue. En débit, la longueur des gouttes augmente régulièrement, d'autant plus rapidement que le rayon au col du faisceau laser est petit.

Cette dernière tendance est en apparence similaire à celle observée pour le temps de blocage. Les données sont donc représentées en fonction du temps de blocage (figure 4.20 (b)). En pression, on observe une indépendance de la taille des gouttes vis-à-vis de la durée du blocage au-delà de $\tau_b > 1$ s. En débit, l'accroissement de la longueur des gouttes augmente linéairement avec le temps de blocage.

Ces deux comportements sont à rapprocher des mesures locales représentées sur les figures 4.15 et 4.16. En pression, on observe ainsi sur la figure 4.15 que la largeur du cou diminue significativement au début du blocage (correspondant au temps caractéristique $\tau_1 \simeq 0{,}4$ s), et évolue ensuite plus lentement, sans que la forme de l'interface évolue notablement par ailleurs. L'évolution du cou, diminuant fortement aux temps courts pour se stabiliser par la suite, doit donc influer sur celle du volume total de la goutte. L'ajustement des données expérimentales à partir d'une relation de la forme biexponentielle (4.39), avec les mêmes temps caractéristiques, montre que ces deux dynamiques sont compatibles.

À débit constant, la conservation de la matière, qui s'écrit ici

$$L = L_0 + \frac{Q_d}{w_d h}\tau_b, \tag{4.50}$$

impose une augmentation du volume directement proportionnelle au temps de blocage, ce qui

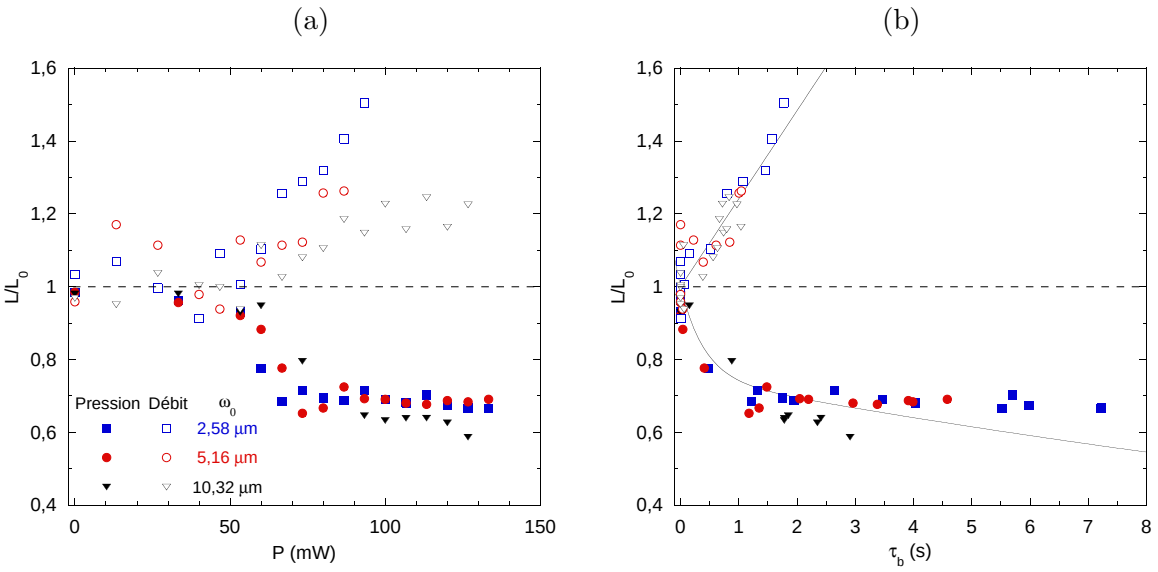

FIG. 4.20 – *Longueur des gouttes normalisée par la longueur laser éteint, représentée en fonction* (a) *de la puissance laser et* (b) *du temps de blocage. Les données représentées correspondent à des mesures à pression (symboles pleins) ou débits (symboles ouverts) imposés. Les lignes continues sont des ajustements de la forme* (4.39) *(pression) et* (4.50) *(débit). La ligne pointillée à* $\frac{L}{L_0} = 1$ *marque une séparation entre les données en pression et en débit.*

semble *a priori* conforme à la linéarité observée. Néanmoins, les figures 4.16 (a) et (b) montrent que l'accroissement de volume n'est pas uniformément réparti. Une partie du volume ajouté peut donc se trouver exclu de la goutte après sa libération, la formation de la goutte suivante se trouvant alors anticipée. De fait, la droite $L(\tau_b)$ a une pente plus faible qu'elle ne serait si la totalité du fluide était transféré à la goutte.

4.3.5 Bilan

Les deux comportements présentés ci-dessus montrent ainsi que le même effet permet d'intervenir sur l'écoulement de deux façons différentes.

À pression imposée, une réduction simultanée de la fréquence d'émission et du volume des gouttes est observée. On peut ainsi réduire le débit effectif, de façon contrôlée et instantanée. Un tel dispositif constitue donc une vanne.

À débits imposés, la diminution de la fréquence d'émission s'accompagne d'une augmentation de la taille des gouttes. Le débit d'eau ne peut être modifié, mais il est possible d'ajuster la taille des gouttes, par l'intermédiaire de la puissance laser. Ce dispositif est donc un calibreur de gouttes.

Au cours du présent chapitre, nous avons démontré que l'effet thermocapillaire induit par laser peut interrompre un écoulement diphasique confiné, à l'instar de ce qui était connu en milieu infini. La vitesse thermocapillaire peut être écrite sous une forme (éq. (4.27)) analogue à l'expression établie avec un gradient de température macroscopique.

À partir de la condition d'équilibre des forces s'appliquant sur une goutte en cours de formation, nous avons également pu caractériser l'efficacité de ce blocage vis-à-vis des paramètres expérimentaux. Nous observons aussi que la taille des gouttes formées peut être contrôlée par le biais de ce blocage.

Néanmoins, cet effet est limité par l'ébullition de l'eau, qui impose une borne supérieure à l'élévation de température donc, en définitive, à la vitesse thermocapillaire accessible. Augmenter l'amplitude de l'effet à échauffement égal suppose un contrôle satisfaisant sur le terme $\left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{eff}$, qui demeure inconnu. Une étude approfondie de la physicochimie interfaciale de notre système est donc nécessaire pour savoir dans quelles limites ce paramètre peut être optimisé.

Il reste cependant possible d'exploiter cet effet, dans ses limites actuelles, à d'autres configurations d'écoulements. C'est l'objet des chapitres suivants.

Chapitre 5

Déviation de gouttes

Au chapitre précédent, nous avons montré la possibilité d'interrompre le déplacement d'un ménisque contraint latéralement, par simple compensation des vitesses, lorsque la vitesse thermocapillaire est comparable à la vitesse de l'écoulement. Nous considérons ici le cas d'un écoulement plus rapide, où un tel équilibre ne peut être atteint compte tenu de la valeur excessive de l'échauffement laser nécessaire. La manipulation de gouttes n'est alors pertinente que dans une direction orthogonale à celle du mouvement.

On considère donc ici un écoulement non contraint latéralement. On montrera ainsi que l'effet thermocapillaire, à l'instar de plusieurs approches de contrôle actif [104, 105, 121] ou passif [44, 45, 48] présentées au chapitre 1, permet de dévier des gouttes de façon contrôlée. Les principaux résultats présentés dans ce chapitre ont été publiés dans la référence [175].

5.1 Géométrie expérimentale

La géométrie du microcanal utilisé est représentée schématiquement sur la figure 5.1. Les gouttes d'eau sont formées au moyen d'une jonction en T, puis transportées par l'huile jusqu'à une zone plus large. L'écoulement, imposé à débits constants, est alors ralenti. Cette zone plus large est terminée par deux canaux de sortie formant une jonction en Y. L'un de ces canaux de sortie (indiqué 1 sur la figure) a une résistance hydrodynamique plus petite. Les gouttes s'orientent ainsi naturellement vers ce canal, qu'elles empruntent pour sortir du système. Cependant, cette asymétrie de résistance hydrodynamique peut être compensée lorsque le trafic de gouttes est important [48]. La démonstration de principe de l'effet d'aiguillage impose à l'écoulement de base de suivre une direction privilégiée, le trafic de gouttes doit donc être limité. Pour

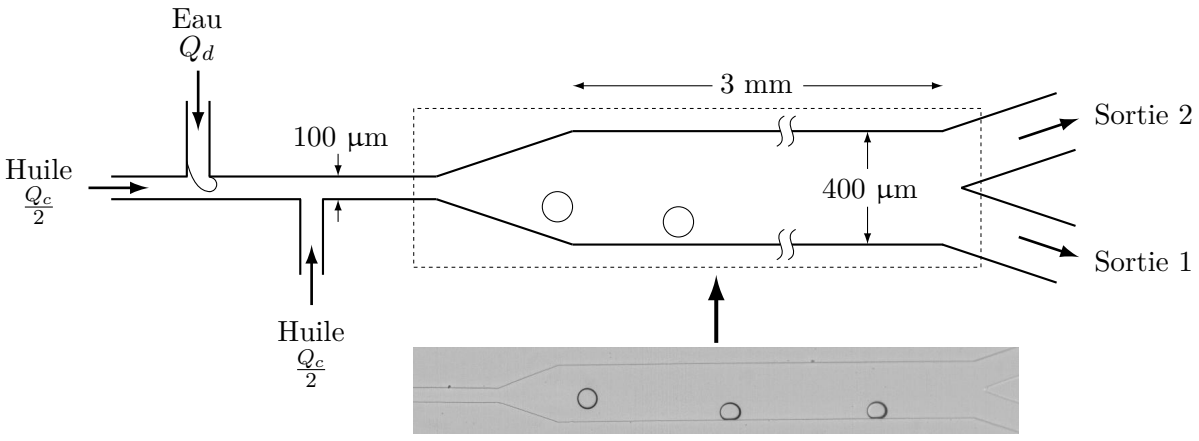

FIG. 5.1 – *Représentation schématique de la géométrie du microcanal utilisé dans ce chapitre.*

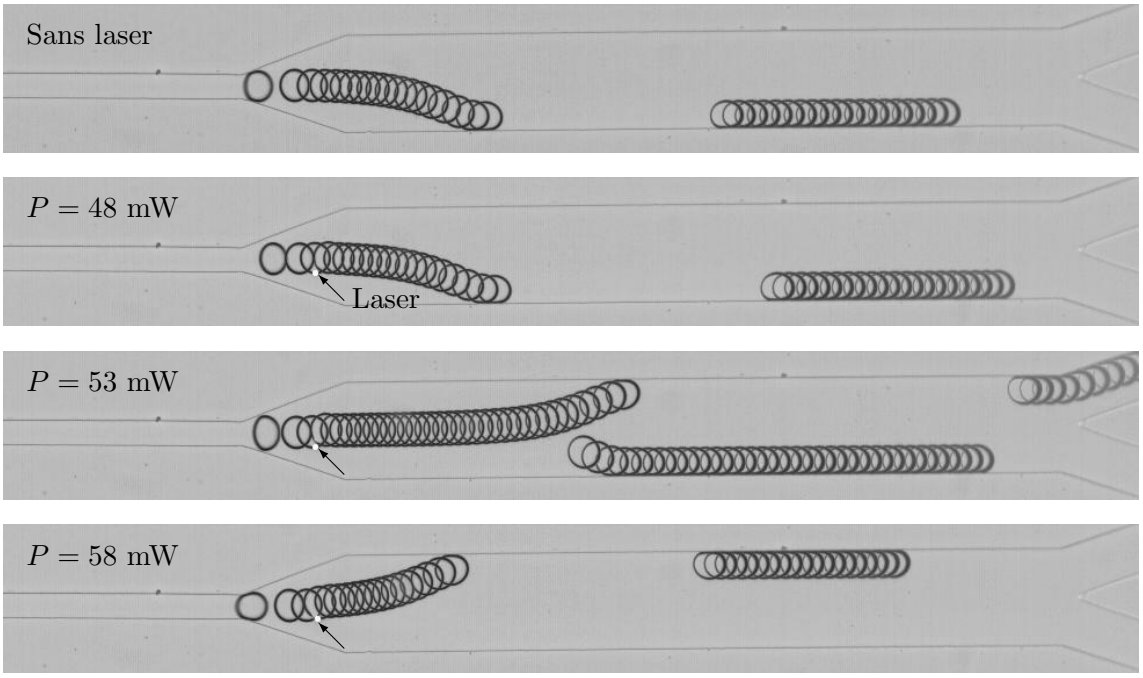

FIG. 5.2 – *Superpositions d'images successives représentant la trajectoire de gouttes dans le microcanal, pour différentes puissances laser. Débit d'huile :* $Q_c = 5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ *; débit d'eau :* $Q_d = 0{,}05\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$*. L'incrément temporel entre deux images successives est* 20 ms.

cela, un embranchement latéral est alimenté en huile entre le canal de l'eau et la zone élargie.

L'effet d'aiguillage consiste à forcer les gouttes à emprunter le canal de sortie 2. Le laser, positionné sur la trajectoire de la goutte et hors de l'axe de son équateur, doit la repousser dans la direction opposée.

5.2 Cinématique des gouttes

5.2.1 Trajectoire

La figure 5.2 représente la trajectoire d'une goutte pour un couple de débits donné. Parvenue à la zone d'élargissement, la goutte ralentit et s'approche spontanément de la paroi du microcanal située en bas de l'image. Elle s'écoule ensuite le long de cette paroi, jusqu'au canal de sortie. Lorsque le laser est allumé à puissance modérée (ici $P = 48$ mW), la goutte n'est pas notablement déviée. À plus grande puissance ($P = 53$ mW), la goutte reste sur l'axe central du microcanal sur une plus grande distance. Sa trajectoire peut finalement la conduire vers le canal opposé, avec une probabilité qui définit l'efficacité d'aiguillage.

Enfin, lorsque la puissance laser est suffisante pour que la goutte atteigne la paroi du haut, ici à $P = 58$ mW, la goutte est systématiquement aiguillée. On observe par ailleurs un petit décrochement de la trajectoire au passage du spot.

L'effet des débits a aussi une influence sur l'allure de la trajectoire. Si le débit d'eau Q_d détermine essentiellement le rayon des gouttes produites [21], la vitesse des gouttes est principalement imposée par le débit d'huile Q_c. La figure 5.3 montre ainsi que la distance parcourue par la goutte avant d'atteindre la paroi du bas est d'autant plus grande que le débit d'huile est grand. L'asymétrie de résistance hydrodynamique est ainsi en apparence plus réduite. Cette remarque pourrait laisser supposer qu'une moindre puissance laser est nécessaire pour vaincre cette asymétrie et aiguiller la goutte. C'est pourtant le contraire qui est observé : la puissance laser nécessaire à l'aiguillage systématique, cas représenté sur les images en présence de laser sur

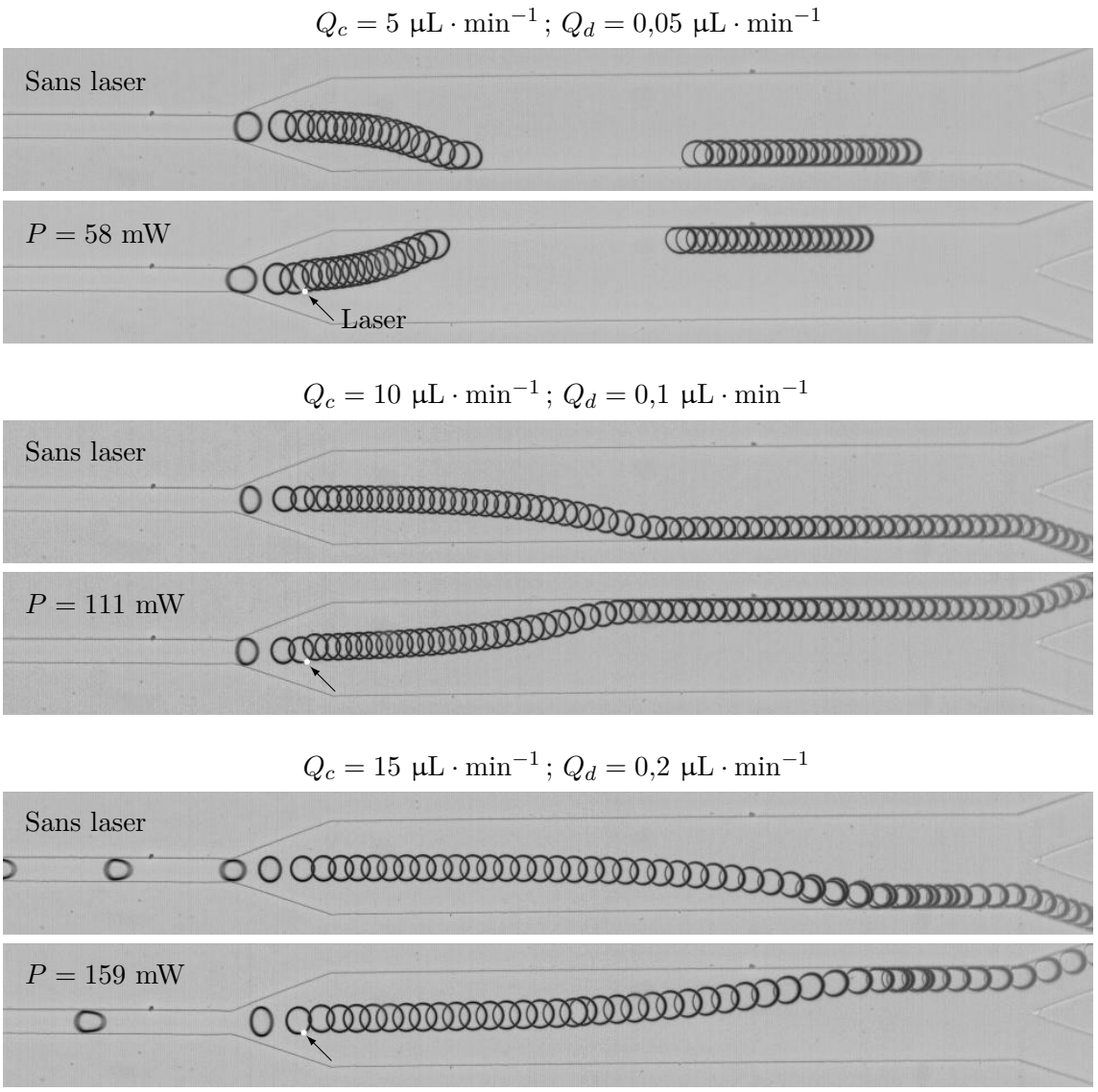

Fig. 5.3 – *Superpositions d'images successives représentant la trajectoire de gouttes dans le microcanal, pour différents débits. L'incrément temporel entre deux images successives est* 20 ms *pour le premier couple de débits,* 10 ms *pour les deux autres. Les rayons moyens des gouttes dans ces conditions de débits sont respectivement* $R = 60$, 54 *et* 55 µm.

la figure 5.3, croît avec le débit d'huile.

La trajectoire du centre de masse des gouttes est obtenue par un traitement numérique des images. On peut ainsi tenter une description quantitative de l'effet observé.

La trajectoire ainsi relevée à différentes puissances, dans les conditions correspondant à celles de la figure 5.2, est représentée sur la figure 5.4. Chaque point représente la position instantanée du centre de masse d'une goutte donnée, dans un repère (x, y) dont l'origine est fixée au niveau du spot laser. La courbe ainsi obtenue résulte de la superposition des trajectoires des gouttes successives, qui reconstitue assez précisément la trajectoire moyenne suivie.

Sans laser, les gouttes suivent une ligne de courant décalée de l'axe central du microcanal, orientée vers le bas. Le faisceau laser induit un décrochement local de la trajectoire, plus ou moins prononcé selon la puissance laser. Ce décrochement écarte la goutte de la ligne de courant qu'elle suit naturellement. L'effet d'aiguillage n'est donc pas conditionné par l'existence de ce décrochement, mais plutôt par son amplitude.

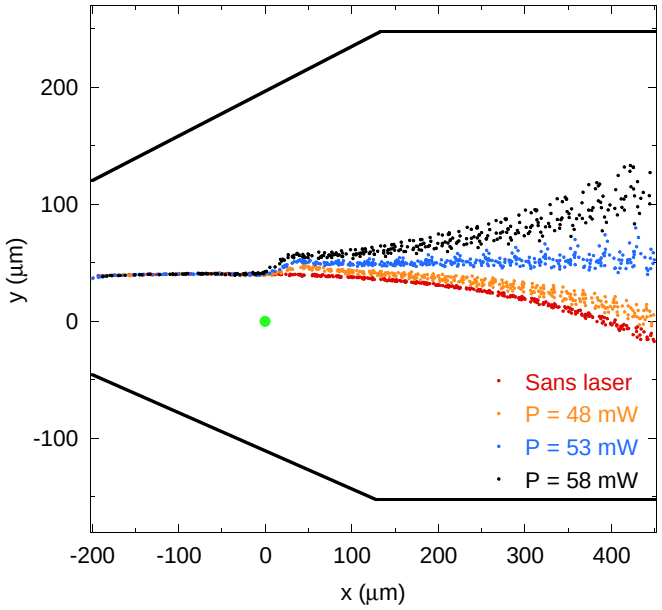

FIG. 5.4 – *Trajectoire du centre de masse des gouttes successives dans les conditions de la figure* 5.2. *L'origine du repère est placée au niveau du spot laser.*

Les trajectoires relevées dans les conditions de la figure 5.3 sont représentées sur la figure 5.5 (a). Ici encore, le décrochement à l'origine de l'effet d'aiguillage est localisé. En aval, l'écart entre les trajectoires avec et sans laser est d'autant moins marqué que le débit d'huile est grand, conformément à ce qui est observé sur les images.

À partir de ces relevés de position, on peut aisément déterminer les composantes de la vitesse instantanée. Supposant la variation de vitesse suffisamment lente, on peut approximer la vitesse à l'instant t à la vitesse moyenne sur l'intervalle Δt correspondant à l'incrément temporel entre deux images successives :

$$\begin{aligned} u_x(t) &\simeq \frac{x(t+\Delta t) - x(t)}{\Delta t} \\ u_y(t) &\simeq \frac{y(t+\Delta t) - y(t)}{\Delta t}. \end{aligned} \tag{5.1}$$

L'évolution de ces composantes au cours de l'écoulement des gouttes dans le microcanal est représentée sur la figure 5.5 (b) pour les conditions considérées sur la figure 5.3. La composante dans l'axe de l'écoulement, u_x, diminue alors que le canal s'élargit, et se stabilise à une valeur de plusieurs mm $\cdot$ s^{-1} lorsque sa section devient constante. La composante transverse u_y, pratiquement nulle, devient négative à mesure que la trajectoire s'incurve vers le bas. Au niveau du faisceau laser, la vitesse des gouttes varie de 0,6 à 13 mm $\cdot$ s^{-1} sur la gamme de débits étudiée.

Laser allumé, les deux composantes de la vitesse sont modifiées. L'effet le plus visible est la déviation transversale, qui se manifeste par l'apparition d'une composante u_y positive au voisinage du spot. L'amplitude de cette composante est de l'ordre du mm $\cdot$ s^{-1}. Aux grands débits, on remarque aussi que la trajectoire des gouttes déviées se rapproche légèrement du faisceau laser juste après l'interaction. Ainsi, la courbe $u_y(x)$ devient localement négative peu après le spot. Cet effet sera discuté à la section 5.5.

Sur l'axe de l'écoulement, la goutte est successivement ralentie puis accélérée au passage du faisceau, ce qui démontre que le laser repousse la goutte, se comportant comme une sorte de « mur » dont la rigidité est contrôlée par la puissance laser.

Une remarque doit être faite en comparant les courbes de vitesse aux trajectoires correspondantes. Le décrochement observé au voisinage du spot se traduit sur la courbe $u_y(x)$ par

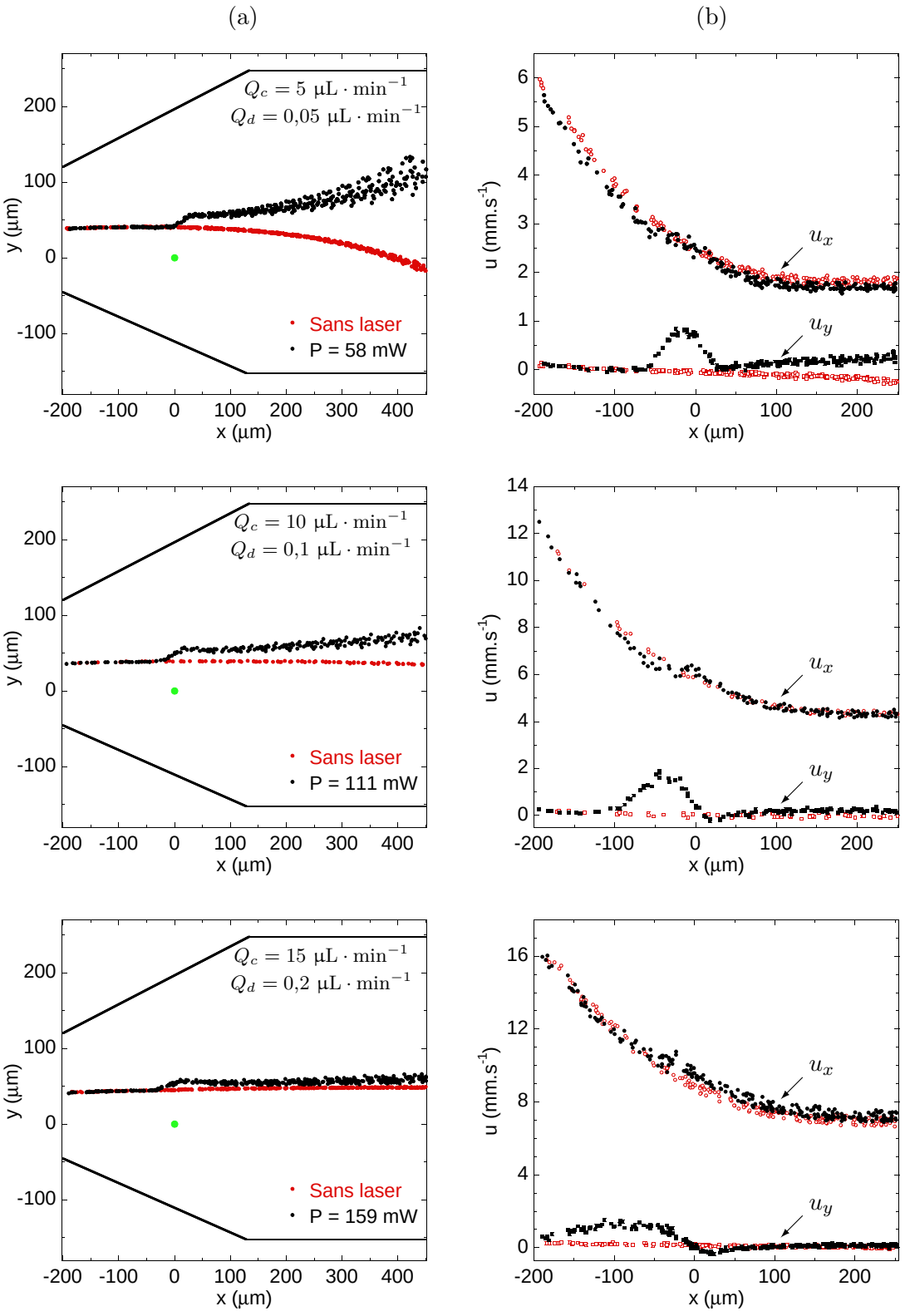

Fig. 5.5 – (a) *Trajectoire et* (b) *vitesse du centre de masse des gouttes successives dans les conditions de la figure* 5.3. *L'incrément temporel entre deux images successives est* 20 ms *pour le premier couple de débits,* 10 ms *pour les deux autres.*

l'apparition d'une « bosse », dont la largeur est cependant très différente de celle du décrochement, et qui tend à s'aplatir lorsque le débit d'huile augmente. Ceci provient du fait que la vitesse est calculée sur un incrément temporel qui peut être plus grand que le temps mis par la goutte pour parcourir une longueur égale à son diamètre. Ainsi, la composante u_y mesurée apparaît comme une moyenne sur la durée de l'interaction, plus étalée et atténuée par rapport à ce que représenterait une mesure de la vitesse instantanée.

5.2.2 Vitesse thermocapillaire

En soustrayant pour chaque composante la vitesse des gouttes sans laser à la vitesse laser allumé, on obtient, à tout instant, le changement de vitesse attribuable à l'effet thermocapillaire. La déviation des gouttes résultant du changement de vitesse moyen, on calcule alors la vitesse moyenne de migration thermocapillaire $\langle u_{th} \rangle$ sur la durée de l'interaction. Le fait de mesurer une vitesse moyenne sur un incrément temporel comparable au temps d'interaction et non une vitesse instantanée, comme mentionné mentionné plus haut, est donc sans conséquence sur la grandeur qui nous intéresse.

La vitesse thermocapillaire moyenne est représentée sur la figure 5.6 pour les couples de débits considérés. L'obtention d'une vitesse donnée requiert une puissance laser plus grande lorsque le débit d'eau, donc le rayon des gouttes, est plus petit (figure 5.6 (a)). En géométrie de type Hele-Shaw, le comportement d'échelle de la vitesse thermocapillaire rapporté dans la littérature [145, 146], que nous avons retrouvé au chapitre précédent (section 4.2.3), s'écrit sous la forme

$$\mathbf{u}_{th} \propto -R \left(\frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)_{eff} \boldsymbol{\nabla} T. \tag{5.2}$$

Les mesures ayant toutes été réalisées à $\omega_0 = 10{,}32$ µm fixé, le gradient de température ne varie qu'avec la puissance laser. Les vitesses mesurées sont donc tracées en fonction du produit RP (figure 5.6 (b)). On observe alors le regroupement de toutes les données expérimentales sur une droite passant par l'origine, ce qui confirme le comportement attendu.

La pente de la droite représentée sur la figure 5.6 est $\frac{u_{th}}{RP} \simeq 0{,}11$ mJ^{-1}. Les mesures de vitesse thermocapillaire réalisées au chapitre précédent (figure 4.11) conduisent à une valeur $\frac{u_{th}}{RP} \simeq 0{,}16$ mJ^{-1} d'ordre de grandeur comparable. Dans le cas considéré ici, l'interface eau-huile

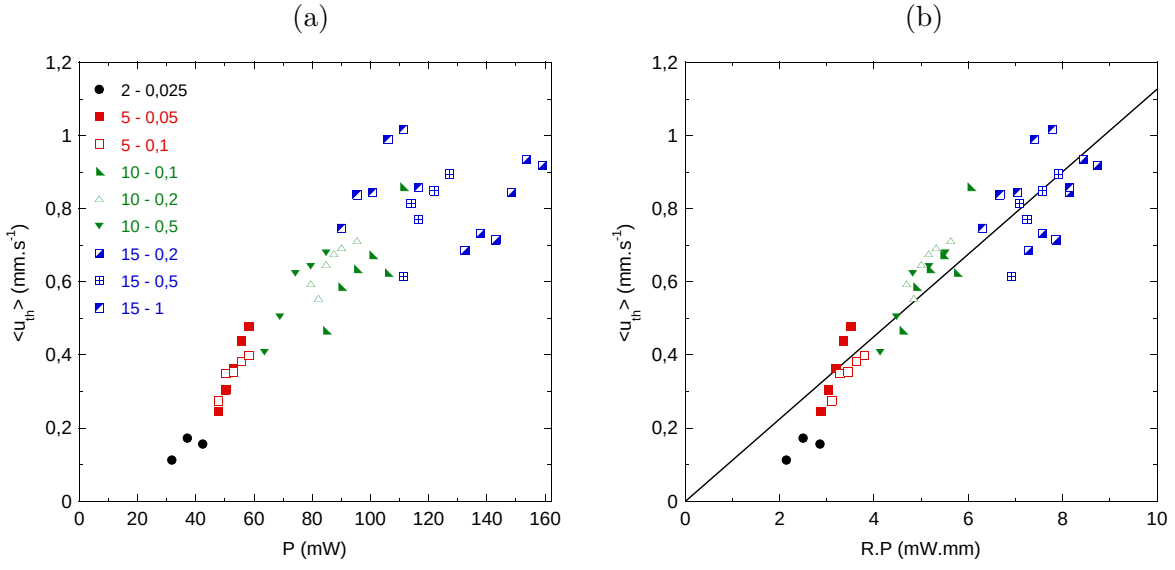

FIG. 5.6 – *Vitesses thermocapillaires mesurées pour différents couples de débits, tracées en fonction* (a) *de la puissance laser P et* (b) *du produit RP. Les valeurs indiquées en légende sont respectivement les débits d'huile Q_c et d'eau Q_d en* µL · min^{-1}.

se déplace pendant son échauffement. La distribution de température est donc transitoire sur une partie notable de la durée d'interaction, contrairement au cas d'une interface immobile. Cela peut être à l'origine de la valeur plus faible obtenue ici.

5.3 Efficacité d'aiguillage

L'efficacité d'aiguillage a été précédemment définie comme la probabilité qu'une goutte emprunte le canal de sortie 2, en haut sur les figures. Sa variation avec la puissance laser, représentée sur la figure 5.7 (a), est très abrupte. L'aiguillage est donc un effet à seuil, dépendant à la fois de la vitesse — la puissance seuil augmente avec le débit d'huile — et de la taille des gouttes — le seuil est plus bas à plus grand débit d'eau. Comme on l'a observé plus haut, la goutte est déviée lorsqu'elle atteint une ligne de courant qui la conduira vers le haut du canal. Le critère d'aiguillage est donc un angle de déviation moyen sur le temps de passage de la goutte sous le faisceau.

Les données expérimentales sont donc tracées (figure 5.7 (b)) en fonction du rapport $\frac{\langle u_y \rangle}{\langle u_x \rangle}$ entre les composantes moyennes des vitesses selon y et x, égal à la tangente de l'angle de déviation moyen. Un regroupement autour d'une valeur unique $\frac{\langle u_y \rangle}{\langle u_x \rangle} \simeq 0{,}05$ est observé, conduisant à un angle de déviation moyen voisin de 3°. Remarquons néanmoins que la valeur seuil est un peu plus grande pour les plus petits débits d'huile, impliquant un angle de déviation plus élevé, comme on l'a observé à la section 5.2.1. À très bas débit, les lignes de courant sont très déformées par l'élargissement, et sont notamment incurvées vers le bas au niveau du spot laser. La goutte doit donc être plus fortement déviée pour atteindre une ligne de courant orientée vers le haut. L'angle de déviation de 3° correspond donc au cas où l'effet de l'asymétrie n'est pas encore perceptible lorsque la goutte passe sous le faisceau.

Peut-on envisager de diminuer la puissance laser nécessaire en optimisant sa position ? Positionner le faisceau en amont permet de diminuer l'influence de l'asymétrie, donc d'espérer diminuer l'angle de déviation critique, jusqu'à la valeur de 3°. Cependant, la vitesse des gouttes est alors plus grande, et la déviation nécessite plus de puissance. Une réduction de la puissance seuil peut être espérée en aval, à la fin de la zone d'élargissement du canal, pour les gouttes ra-

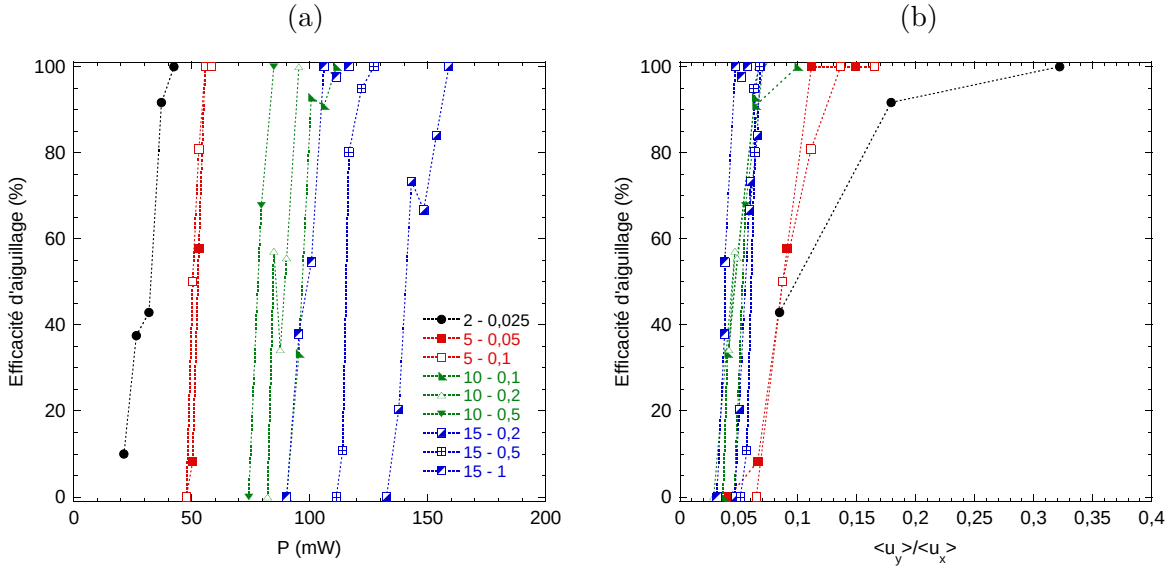

Fig. 5.7 – *Efficacité d'aiguillage en fonction* (a) *de la puissance laser et* (b) *du rapport entre les composantes moyennes suivant y et x de la vitesse de la goutte, pour les couples de débits étudiés. Les symboles sont les mêmes que sur la figure* 5.6.

pides : l'influence de l'asymétrie sur les lignes de courant demeure marginale, et les gouttes ont atteint leur vitesse minimale. Sur l'axe y, on peut espérer augmenter l'efficacité de l'interaction en rapprochant le faisceau de l'axe central du canal. Ce choix est cependant défavorable aux gouttes les plus lentes, qui se présenteraient alors au faisceau laser sous une incidence incompatible avec l'effet d'aiguillage.

5.4 Applications

5.4.1 Séparation de gouttes

L'effet d'aiguillage peut être utilisé pour séparer des gouttes selon leur composition. Considérons deux liquides dont les propriétés d'absorption sont différentes, par exemple de l'eau pure et une solution d'uranine. Si ces deux liquides sont injectés comme phase dispersée, chacun par l'une des deux jonctions en T du microcanal, des gouttes d'eau pure et de colorant seront alternativement formées et s'écouleront spontanément par le bas du canal, indépendamment de leur composition, comme représenté sur la première image de la figure 5.8.

Les comportements diffèrent sous irradiation. L'eau pure étant transparente à notre longueur d'onde de travail, les gouttes d'eau pure sont insensibles au faisceau laser, et conservent leur

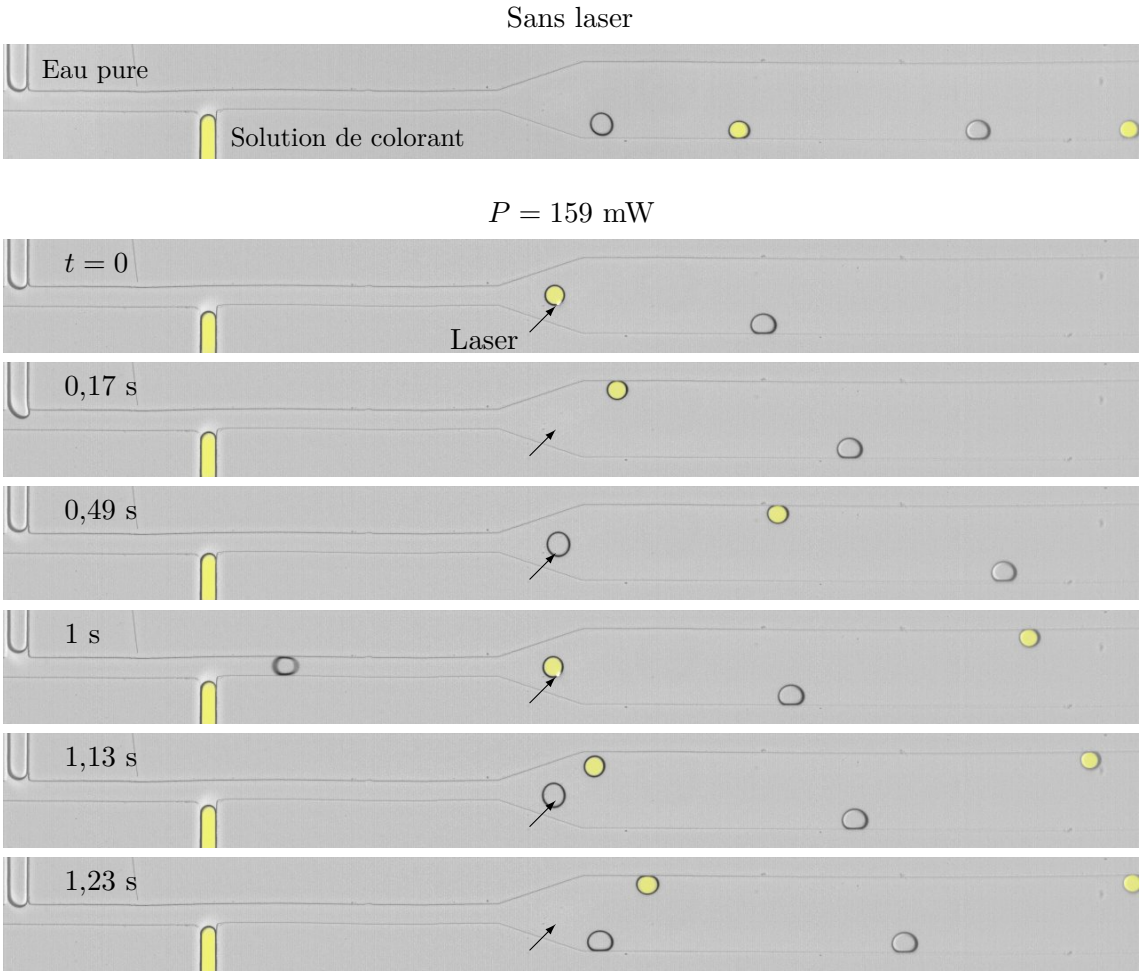

FIG. 5.8 – *Séquence d'images représentant l'écoulement de gouttes d'eau pure et en présence de colorant (ces dernières ont été colorisées sur les images). Sans laser (image du haut), les gouttes s'écoulent naturellement par le bas du canal. Avec laser, les gouttes contenant du colorant sont déviées, pas les gouttes d'eau pure. Débit d'huile : $Q_c = 5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$; débits d'eau : $Q_d = 0{,}03\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ pour chaque solution.*

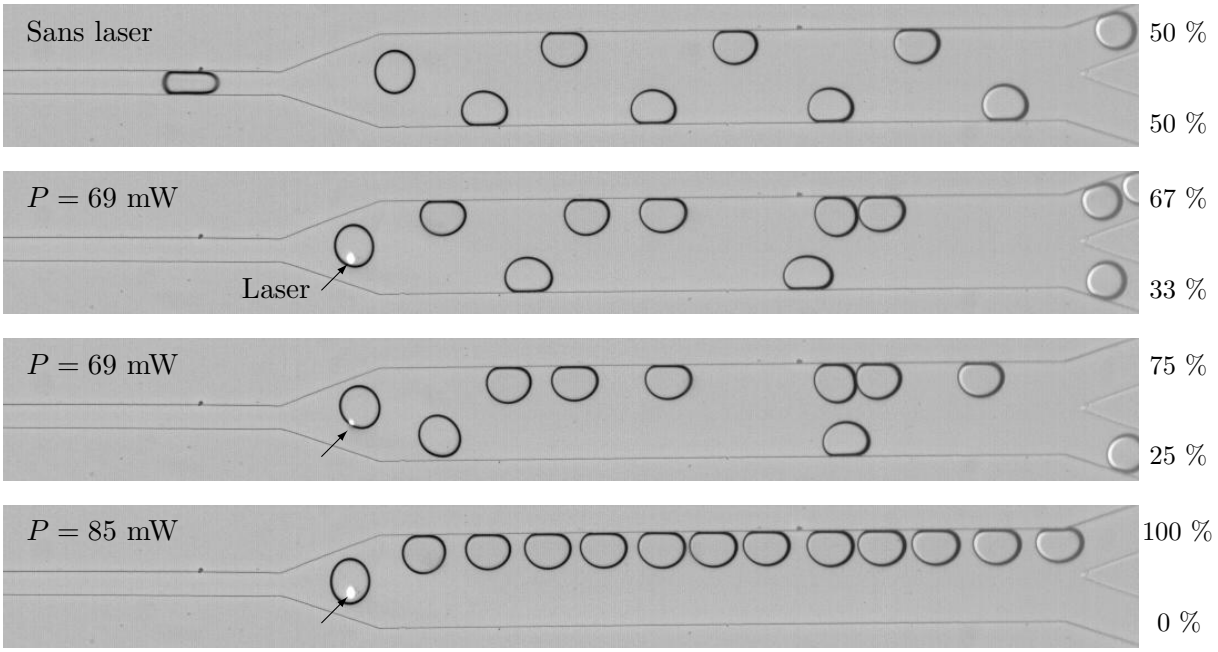

Fig. 5.9 – *Exemples de répartition des gouttes à fort trafic. Débit d'huile :* $Q_c = 5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ *; débit d'eau :* $Q_d = 0{,}2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$.

trajectoire initiale. Les gouttes de colorant, absorbantes, sont systématiquement déviées lorsque la puissance est suffisante (figure 5.8).

5.4.2 Régulation du trafic

Lorsque le trafic est suffisamment important pour compenser l'asymétrie naturelle du microcanal, les gouttes se répartissent entre les deux canaux de sortie. Cette répartition résulte de deux effets [48]. D'une part, la présence d'une goutte au sein d'un canal augmente sa résistance hydrodynamique, ce qui peut contraindre la goutte suivante à emprunter un canal différent. D'autre part, une goutte déforme localement les lignes de courant, ce qui modifie la trajectoire de la goutte suivante lorsqu'elle est suffisamment proche.

On considère ainsi un écoulement de gouttes également réparti entre les deux canaux de sortie (image du haut sur la figure 5.9). L'effet d'aiguillage permet de modifier cette répartition. Lorsque la puissance est suffisante, toutes les gouttes peuvent être aiguillées, comme représenté sur l'image du bas de la figure 5.9. À puissance modérée, la déviation individuelle de chaque goutte se couple avec l'interaction collective entre les gouttes. Les gouttes se répartissent alors d'une façon régulière, qui peut fluctuer au cours du temps. Les deux images du milieu de la figure 5.9 montrent deux exemples d'arrangements obtenus avec une même puissance laser.

Ainsi, dans le cas où le trafic de gouttes est important, l'effet d'aiguillage permet d'ajuster la répartition des gouttes au sein des canaux de sortie. Néanmoins, le couplage entre un effet individuel — l'aiguillage — et un effet collectif — l'interaction entre gouttes — conduit à des réarrangements dynamiques qui limitent le degré de maîtrise de cette répartition. Nous verrons par la suite, dans un contexte différent (au chapitre 7), un autre exemple de réorganisation dynamique de l'écoulement.

5.5 Effet d'aiguillage inversé

Avant de clore ce chapitre, un dernier effet, qui demeure incompris, doit être mentionné. Cet effet a été observé incidemment aux grandes vitesses d'écoulement ($Q_c \geqslant 10\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$),

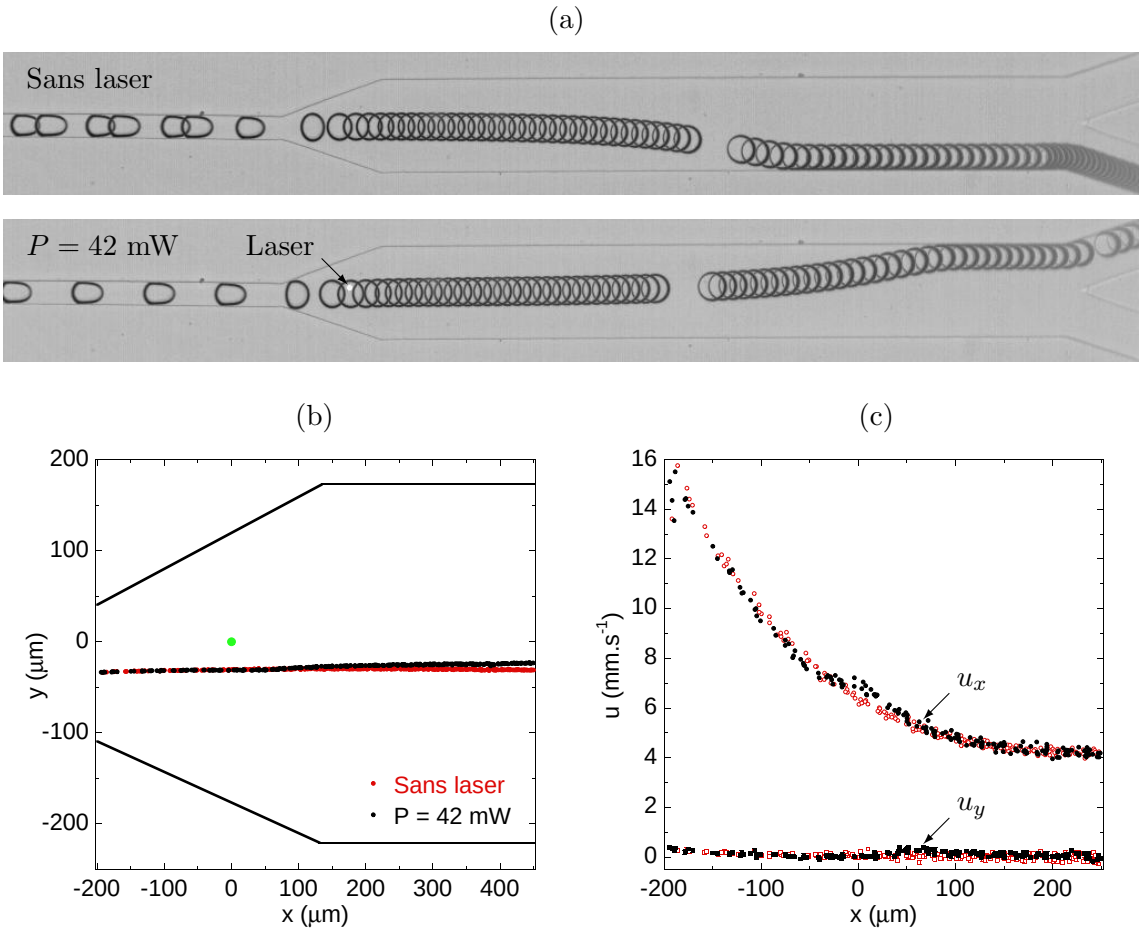

FIG. 5.10 – *Effet d'aiguillage inversé. Dans ces conditions de débits ($Q_c = 10\ \mu L \cdot min^{-1}$, $Q_d = 0{,}1\ \mu L \cdot min^{-1}$), l'effet d'aiguillage est attendu autour de* $100-110$ mW. (a) *Superposition d'images illustrant cet effet,* (b) *trajectoire correspondante et* (c) *évolution des composantes de la vitesse. L'incrément temporel* $\Delta t = 5$ ms, *pour la superposition d'images seule une image sur deux a été considérée.*

dans des conditions où le trafic ne modifie pas la répartition asymétrique des gouttes. L'effet d'asymétrie est alors peu marqué et la trajectoire des gouttes ne s'incurve qu'assez loin en aval de la zone d'élargissement (image du haut de la figure 5.10 (a)).

Si le faisceau laser est positionné du côté du canal de sortie 2, opposé à l'écoulement de base, on s'attend à voir l'effet d'aiguillage renforcer l'asymétrie naturelle du microcanal, sans conséquence sur la répartition finale des gouttes. Cependant, à une puissance très inférieure à la puissance nécessaire pour dévier notablement la goutte de sa ligne de courant, on observe que la trajectoire de la goutte s'incurve en sens opposé, comme représenté sur la figure 5.10 (a). La goutte emprunte alors le canal situé du même côté que le faisceau laser.

La trajectoire du centre de masse de la goutte (figure 5.10 (b)) montre les comportements suivants :

- aucun décrochement de la trajectoire n'est perceptible au niveau du spot laser, la goutte conserve donc sa ligne de courant ;
- la goutte s'écarte de sa trajectoire naturelle en aval du spot laser, laissant supposer que l'effet à l'origine de cette déviation inversée se produit en face arrière.

Cela se traduit sur la courbe de vitesse (figure 5.10 (c)) par l'apparition d'une composante u_y orientée vers le spot laser (donc positive) en aval du faisceau. Cette composante peut d'ailleurs être retrouvée — en sens opposé — sur la figure 5.5 (b), aux plus grands débits. D'autre part, on remarque sur cette courbe que la composante dans l'axe de l'écoulement (u_x) est successivement ralentie et accélérée au passage du faisceau, confirmant le caractère répulsif de l'effet qu'il induit.

L'effet d'aiguillage inversé se produit en aval du faisceau, à grande vitesse d'écoulement ($u_x \geqslant 7$ mm $\cdot$ s^{-1} au niveau du spot). Il conduit à une réorientation de l'écoulement des gouttes sans que celles-ci changent de ligne de courant : cette réorientation doit donc résulter d'une modification de la forme des lignes de courant. Ces arguments plaident en faveur d'une origine inertielle de cet effet.

Chapitre 6

Caractérisation d'écoulements diphasiques

Au cours des chapitres précédents, nous avons considéré des écoulements à cadence modérée, dans le but d'étudier des effets essentiellement à l'échelle de la goutte individuelle. De tels écoulements peuvent être aisément caractérisés par l'analyse des séquences vidéo enregistrées pendant l'expérience.

Parallèlement à ces études, nous avons développé, en collaboration avec la cellule électronique du CPMOH (Joël Plantard et Sébastien Cassagnère), un dispositif optoélectronique susceptible de fournir une caractérisation supplémentaire de l'écoulement, et qui ne souffre pas des limitations de l'analyse vidéo. Cet instrument permet de détecter le passage des gouttes et de mesurer en temps réel leur vitesse et leur taille, à des cadences pouvant atteindre plusieurs centaines de Hz, rendant possible la caractérisation d'écoulements diphasiques aux temps longs.

6.1 État de l'art

La caractérisation d'écoulements diphasiques milli- et microfluidiques demeure essentiellement du ressort de l'imagerie à haute cadence. Bien qu'elle autorise une caractérisation exhaustive (fréquence de passage, taille des gouttes, vitesse d'écoulement), cette méthode présente plusieurs limitations, déjà évoquées :

- elle nécessite une caméra rapide relativement coûteuse ;
- la durée d'acquisition est limitée par l'espace disque, réduisant les possibilités de caractérisation aux temps longs ;
- la caractérisation ne peut se faire en temps réel.

Des méthodes de détection en temps réel, principalement optiques, ont été proposées. La plus simple consiste à détecter, au moyen d'une photodiode placée dans l'axe d'un faisceau laser traversant le microcanal, la variation d'éclairement au passage d'une goutte (la référence [48] en fournit un exemple d'utilisation). Cependant, seul le passage d'une goutte peut être observé, le signal n'offrant aucune information sur sa taille ou sa vitesse. On peut néanmoins extrapoler cette méthode en plaçant deux faisceaux en deux points suffisamment éloignés le long de l'axe de l'écoulement, pour avoir accès à la vitesse moyenne des gouttes entre ces deux points.

Avec une approche similaire, mais au prix d'une microfabrication dédiée, Nguyen et coll. [176] ont réalisé un capteur à fibre optique intégrée. Le faisceau issu de la fibre traverse le microcanal perpendiculairement à l'écoulement et est détecté sur une photodiode. La forme du signal détecté au passage d'une goutte dépend de sa taille. Les caractéristiques de l'écoulement peuvent donc être comparées lorsque les débits sont modifiés. Cependant, l'interprétation du signal ne permet pas, en l'état, de déterminer la taille ou la vitesse des gouttes.

Une alternative consiste à mesurer, au moyen d'un détecteur de position, la déflexion d'un faisceau à incidence oblique [177]. Une bulle confinée dévie, par effet de lame à faces parallèles, un faisceau laser, l'amplitude de cette déviation dépendant de la forme de la bulle. L'interprétation du signal permet ainsi de comparer la taille des bulles d'une population. Cette méthode nécessite cependant un contraste d'indice suffisant ; par ailleurs, les tailles de bulles mesurables sont comprises dans un intervalle relativement restreint (50 à 400 µm), limité par la géométrie du canal. Enfin, la vitesse de l'écoulement n'est pas mesurée.

D'autres méthodes sont basées sur l'utilisation de fibres optiques intégrées dans le canal comme sonde de l'écoulement. Une fibre unique, positionnée dans l'axe de l'écoulement, transperce l'interface entre les deux fluides [178–181]. L'étude du signal détecté pendant l'interaction entre l'interface et la sonde permet de déterminer la vitesse et la taille des gouttes ou des bulles. Outre la complexité du dispositif et l'altération de la sonde au cours de l'interaction, cette méthode modifie la vitesse de l'écoulement et la forme de la goutte ou de la bulle au cours de la mesure. Une approche apparemment moins invasive consiste à positionner la sonde perpendiculairement à l'écoulement. De Lasa et coll. [182] ont ainsi breveté un montage à plusieurs fibres capable de détecter la forme d'objets s'écoulant au sein d'un canal millifluidique. Le taux de détection est cependant limité, et le montage demeure complexe et figé.

Plus récemment, Cox et coll. [183, 184] ont breveté une approche optique non invasive appliquée à la détection de cellules sanguines. L'ombre projetée des cellules est détectée par un capteur comportant deux zones sensibles : le passage des cellules en ces deux points donne ainsi leur vitesse. Par ailleurs, si les cellules sont plus petites que la fenêtre sensible du détecteur, l'amplitude du signal dépend de la taille des cellules. Une calibration préalable avec des particules de taille connue permet alors de déterminer la taille des cellules. Cette méthode, relativement simple et ne nécessitant aucune microfabrication, est donc adaptée à la mesure de petits objets (typiquement micrométriques), mais ne permet pas de mesurer des objets plus gros. Elle est également limitée en débit, puisque conditionnée au passage simultané d'une seule cellule entre les deux fenêtres du capteur.

Outre ces méthodes optiques, signalons une approche alternative qui fournit une caractérisation complète de l'écoulement. Cette méthode est basée sur la mesure d'une modification de capacité induite au sein d'un liquide par la présence d'un liquide de constante diélectrique différente [185]. Cette mesure permet de détecter la présence d'une goutte et de déterminer, *via* un traitement approprié du signal, sa taille et sa vitesse d'écoulement. Elle nécessite cependant l'intégration de capteurs capacitifs, et sa sensibilité est réduite dans le cas de gouttes de petite taille, où la variation de capacité induite est faible.

Plusieurs solutions ont ainsi été proposées pour caractériser des écoulements diphasiques, chacune adaptée à une situation donnée. Cependant, les approches qui fournissent une information exhaustive sur l'écoulement imposent des contraintes d'utilisation — limitations sur la taille ou la vitesse des objets détectés — ou d'environnement — microfabrication, sondage — qui limitent leurs potentialités d'application. L'approche proposée ici s'affranchit de ces contraintes.

6.2 Principe de la mesure

6.2.1 Dispositif expérimental

La méthode que nous proposons repose sur la détection des variations successives d'éclairement au passage d'un ménisque devant deux capteurs photosensibles montés de façon différentielle. L'ensemble du montage réalisé pour la validation des mesures est représenté sur la

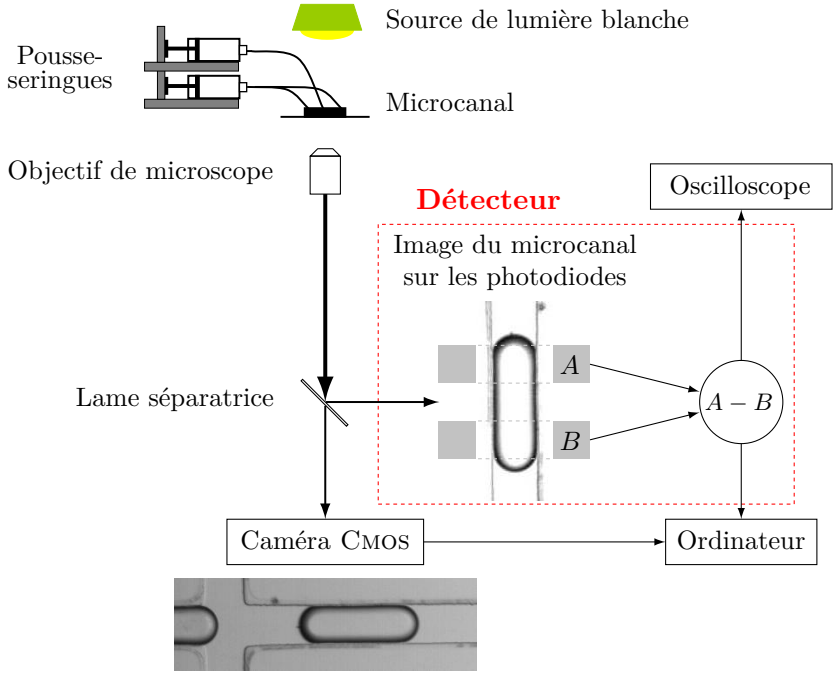

Fig. 6.1 – *Représentation schématique du dispositif expérimental utilisé dans ce chapitre. Le détecteur est constitué de deux photodiodes A et B montées en inverse, et d'une carte électronique qui réalise la conversion courant-tension de la différence entre les deux signaux, et la conversion analogique-numérique du signal différentiel $A - B$. Ces données sont ensuite transmises au logiciel de traitement par une liaison USB.*

figure 6.1.

L'image de l'écoulement est faite directement sur le détecteur, au moyen d'un dispositif d'imagerie, par exemple un objectif de microscope. Dans notre cas, le montage utilisé précédemment est simplement modifié par l'adjonction d'une lame séparatrice, afin d'imager le microcanal simultanément sur le détecteur et sur la caméra. Le grandissement de l'objectif permet d'obtenir une image des gouttes plus grande que les dimensions des capteurs.

Le détecteur est constitué de deux photodiodes A et B identiques montées en inverse. Le courant généré par l'association des deux photodiodes, appelé courant différentiel, est ainsi la différence entre les courants produits par chacune des photodiodes. Le courant différentiel traduit donc un déséquilibre d'éclairement entre les deux photodiodes. On peut ainsi mesurer de très faibles perturbations d'éclairement, tout en s'affranchissant du bruit ambiant.

Le courant différentiel est ensuite converti en tension et amplifié. L'interprétation du signal (section 6.2.2) conduit à la définition de seuils, dont la détection produit un signal logique, transmis par une liaison USB à un logiciel de traitement développé avec LabVIEW™. Un oscilloscope permet en outre la visualisation du signal analogique et des signaux logiques.

Les photodiodes présentent une surface sensible rectangulaire de 15 mm × 100 µm, que l'on dispose perpendiculairement à l'axe de l'écoulement. Elles sont séparées d'un intervalle non sensible de 370 µm. Ces valeurs sont imposées par les composants utilisés. Bien qu'elles ne présentent pas un caractère fondamental, leur connaissance est indispensable pour une interprétation quantitative du signal.

Dans ce chapitre, on utilise un microcanal à géométrie « en croix », de dimensions caractéristiques $w_c = w_d \simeq 100$ µm et $h \simeq 50$ µm. L'objectif de microscope de référence a un grandissement ×5.

6.2.2 Interprétation du signal

Le signal produit au passage d'une goutte est représenté sur la figure 6.2. Sur cette figure sont représentés le signal mesuré par le détecteur, tel qu'observé à l'oscilloscope, et le signal correspondant à l'intégration des niveaux de gris sur la surface apparente des photodiodes (représentée en grisé clair sur les images) déduit du film acquis en parallèle.

Allure du signal

Considérons le cas d'une goutte dont la longueur apparente est plus grande que la distance entre les deux photodiodes, représenté sur la figure 6.2 (a). Lorsque le ménisque avant recouvre la photodiode A (image i), la réflexion totale diminue la quantité de lumière transmise. Le signal est ainsi fortement déséquilibré ($A - B < 0$) ; le déséquilibre maximum définit un premier minimum du signal, correspondant à l'instant où la lumière détectée par cette photodiode est minimale. Lorsque le ménisque se trouve entre les deux photodiodes (image ii), l'aire ombrée sur la photodiode A diminue : le signal reste négatif mais augmente. Le ménisque atteint ensuite la photodiode B ; lorsque l'aire ombrée sur cette photodiode devient supérieure à l'aire ombrée sur la photodiode A, le signal devient positif, et atteint un premier maximum (image iii). Comme les deux photodiodes détectent une ombre, l'amplitude de ce maximum est toujours inférieure à celle du minimum précédent. Les bords de la goutte recouvrent ensuite de manière identique les deux photodiodes (image iv), conduisant à un signal nul.

Le signal correspondant à la face arrière de la goutte (images v et vi) est complémentaire et inversé. On observe donc successivement une alternance négative et une alternance positive, définissant respectivement un second minimum et un second maximum.

D'après ce qui précède, on peut remarquer que l'amplitude du premier minimum, comme celle du dernier maximum, ne dépend que de la forme des ménisques avant et arrière. Celle-ci est imposée uniquement par le confinement latéral, tant que la taille des gouttes est supérieure à la largeur du microcanal, et tant que la goutte est peu déformée par l'écoulement (ce qui correspond au cas d'écoulements à petit nombre capillaire). Ainsi, dans ces conditions, l'amplitude du signal est indépendante de la vitesse et de la taille des gouttes.

La même séquence peut être reproduite dans le cas de gouttes dont la longueur apparente est comparable à la distance entre les deux photodiodes (figure 6.2 (b)). L'allure du signal est similaire au cas précédent, mais l'amplitude des extrema intermédiaires (premier maximum et second minimum) est moindre. Ceci provient du fait que le recouvrement de la photodiode B par le ménisque avant est compensé par le recouvrement de la photodiode A par le ménisque arrière (image iii).

Par ailleurs, la goutte s'écoulant ici à plus grande vitesse que dans le cas précédent, les ménisques avant et arrière n'ont pas la même forme. Cela ne semble pas influer notoirement sur la forme du signal, mais les pentes locales après le premier minimum et avant le second maximum sont significativement différentes.

Cette interprétation en termes d'ombre détectée est confirmée par l'excellent recouvrement entre le signal tiré de l'exploitation de la vidéo et le signal issu du détecteur.

Signaux logiques

Les extrema d'amplitude bien identifiés permettent de déterminer précisément, et de détecter de manière automatique, le passage d'un ménisque en un point précis. On définit ainsi, à partir de valeurs seuil du signal, des signaux logiques utilisés pour le calcul de la vitesse et de la longueur des gouttes. La détection d'un extremum étant difficile à réaliser en temps réel, les valeurs seuil sont définies dans les zones de forte pente, qui offrent un meilleur contraste de détection. Par ailleurs, la définition de ces seuils nécessite de connaître les valeurs du maximum et du minimum

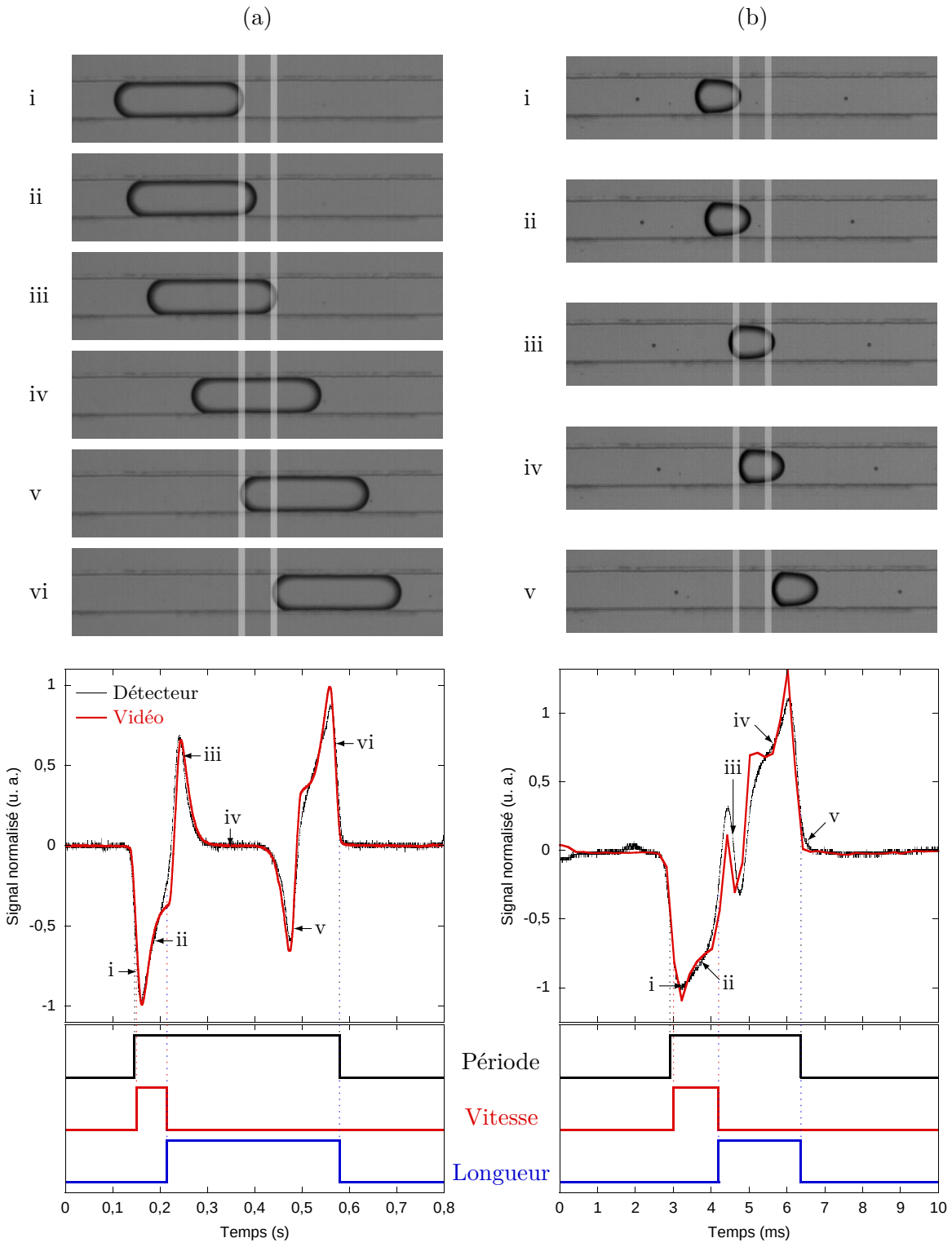

Fig. 6.2 – *Représentation du passage d'une goutte devant les photodiodes (représentées en grisé clair sur la succession d'images). Les courbes du haut représentent le signal analogique correspondant : en noir, le signal mesuré par le détecteur, tel qu'enregistré sur l'oscilloscope ; en rouge, le signal mesuré sur les images à partir d'une détection des niveaux de gris. Les graphes du bas représentent les signaux logiques issus de la détection des seuils définis dans le texte.* (a) *Cas d'une goutte longue et lente (débit d'huile* $Q_c = 0{,}4\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$*, débit d'eau* $Q_d = 0{,}1\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$*),* (b) *cas d'une goutte courte et rapide (débit d'huile* $Q_c = 25\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$*, débit d'eau* $Q_d = 2{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$*).*

du signal. Celles-ci sont donc déterminées sur la goutte précédant la première goutte que l'on cherche à mesurer, et actualisées à chaque goutte.

Le passage d'une goutte est détecté lorsque le signal atteint 50 % de la valeur du minimum (instant t_{50}). Un seuillage est ensuite réalisé à 75 % et 25 % du premier minimum (instants $t_{75,A}$ et $t_{25,A}$ respectivement) et du second maximum ($t_{75,B}$ et $t_{25,B}$), de manière à décrire le passage complet de la goutte sur le détecteur. Trois signaux logiques, représentés sur les chronogrammes du bas de la figure 6.2, sont déterminés à partir de ces seuils.

Le choix de ces valeurs de seuillage répond à un souci d'optimisation numérique. Cependant, l'analyse du signal obtenu à partir de la séquence vidéo permet de leur associer une position précise du ménisque.

Le signal « période » est défini entre t_{50} et $t_{25,B}$. Le début de ce signal définit l'instant de passage de la goutte, l'instant final est arbitraire. La période de passage des gouttes est la différence entre les temps de passage de deux gouttes successives.

Le signal « vitesse » détermine le temps mis par un ménisque à parcourir une distance connue. L'intervalle de temps entre $t_{75,A}$ et $t_{25,A}$ correspond au temps mis par le ménisque avant de la goutte pour parcourir la distance entre les deux photodiodes (370 µm). On en déduit ainsi la vitesse de la goutte pendant la traversée du capteur. Cette mesure peut éventuellement être répétée sur la partie complémentaire du signal ($t_{75,B}$ et $t_{25,B}$), une correction éventuelle doit alors être appliquée lorsque la forme du ménisque arrière est différente.

Le signal « longueur » correspond à la détection du passage successif des ménisques avant et arrière en un point, ou en deux points séparés d'une distance connue. La détection en un point correspond par exemple au couple d'images i et v (ou iii et vi) sur la figure 6.2 (a). Elle fait donc intervenir un extremum intermédiaire, difficile à caractériser car dépendant de la taille de la goutte. On utilise donc plutôt les instants $t_{25,A}$ et $t_{25,B}$, qui déterminent le temps mis par la goutte pour passer d'une configuration où le ménisque avant s'éloigne de la photodiode A à une configuration où le ménisque arrière s'éloigne de la photodiode B. Entre ces deux instants, la goutte a donc parcouru une distance égale à sa longueur additionnée de la largeur d'une photodiode. Ainsi, connaissant par ailleurs la vitesse de la goutte, on peut en déduire sa longueur.

Les valeurs tirées de ces trois signaux sont calculées et affichées en temps réel sur un ordinateur, et répertoriées dans un fichier texte facilement exploitable.

Limites

L'analyse du signal présentée ici repose sur l'hypothèse que la forme des ménisques est conservée d'une goutte à la suivante, ce qui peut être imposé par le confinement. Elle n'est donc pas adaptée à la mesure de populations polydisperses de gouttes plus petites que la largeur du canal, ou d'objets de nature différente, telles que des particules en suspension ou des cellules. Néanmoins, de tels objets peuvent être détectés et fournissent un signal interprétable, même si les amplitudes des extrema sont différentes. Ainsi, la principale limitation d'ordre optique est imposée par la résolution de l'objectif de microscope utilisé. Cette limite peut être contournée en utilisant un objectif de plus fort grandissement ; cependant, le temps de parcours du capteur est alors moindre, réduisant la précision sur la mesure de la vitesse (et, par suite, sur celle de la longueur). En outre, lorsque l'épaisseur apparente des ménisques dépasse la largeur des photodiodes, le signal détecté devient très peu contrasté : il faut alors réduire le grandissement de l'objectif.

D'autre part, le signal est analysable tant que le dispositif n'est parcouru que par une goutte à la fois. La distance entre deux objets successifs doit donc être au moins égale à la largeur totale du capteur. Cette limite peut être partiellement contournée en changeant l'objectif du microscope, dans la limite discutée précédemment, mais la caractérisation d'objets en contact, par exemple les bulles constituant une mousse, est impossible avec ce dispositif.

Enfin, une dernière limitation est imposée par l'électronique. Le traitement des données doit être réalisé à une fréquence très supérieure à la fréquence de passage des objets en écoulement. Avec les composants utilisés — relativement basiques —, la limite du dispositif est de l'ordre de 0,5 kHz. Un dispositif destiné à caractériser des fréquences plus élevées a été récemment développé, permettant d'analyser des écoulements jusqu'à des fréquences atteignant quelques kHz.

6.3 Validation des résultats

L'écoulement est caractérisé simultanément avec le détecteur et par l'analyse d'une séquence vidéo, dans différentes conditions. Nous considérons tout d'abord un écoulement d'eau dans l'hexadécane dans différentes conditions de débits, pour évaluer les potentialités d'utilisation du dispositif en termes de vitesse et de fréquence des gouttes, puis d'autres couples de fluides, afin de déterminer sa sensibilité au contraste d'indice de réfraction. Sur toutes ces comparaisons, le nombre de gouttes est limité, pour des raisons d'espace mémoire, par l'acquisition vidéo.

6.3.1 Étude en débits

La figure 6.3 présente (a) les périodes, (b) les vitesses et (c) les longueurs comparées dans le cas de débits modérés ($Q_c = 0{,}4\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $Q_d = 0{,}1\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$). Pour ces trois grandeurs, les mesures issues du détecteur et celles tirées de l'analyse vidéo présentent un écart typiquement inférieur à 5 %. Cet excellent accord confirme la pertinence de l'interprétation du signal.

Un couple de débits intermédiaires ($Q_c = 1{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $Q_d = 0{,}4\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$) est représenté sur la figure 6.4. La digitalisation apparente des mesures de période (figure (a)) et de vitesse (figure (b)) issues de l'analyse vidéo résulte de la relativement faible cadence d'enregistrement des images (100 images par seconde). Les deux séries de mesures de la période présentent néanmoins un accord excellent qui confirme l'efficacité de la détection. En revanche, un écart systématique de l'ordre de $5 - 6$ % est observé sur les mesures de vitesse (figure (b)) et sur les mesures de longueur (figure (c)). Cet écart peut provenir de la déformation des ménisques, encore peu marquée mais visible. L'accord de tendance montre tout de même que la mesure demeure pertinente.

La figure 6.5 présente les mesures dans le cas de forts débits ($Q_c = 25\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $Q_d = 2{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$). Dans ce cas, les irrégularités de l'écoulement sont masquées par la digitalisation des mesures. L'association des deux mesures au niveau de la goutte individuelle est alors impossible. Néanmoins, sur l'ensemble de l'écoulement analysé, l'accord entre les mesures de période (figure (a)) demeure très bon. Les résultats pour la vitesse (figure (b)) et pour la longueur (figure (c)) présentent ici encore une erreur systématique, de l'ordre de 15 % pour la vitesse et 25 % pour la longueur. Les mesures sont cependant limitées par l'électronique : une électronique plus rapide offre une meilleure précision sur ces deux mesures.

Le dispositif a également été testé à des débits encore plus élevés ($Q_c = 88\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $Q_d = 10\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$). Les gouttes, émises toutes les 2 ms, ont une vitesse de l'ordre de $28\ \text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$ et une longueur de 100 µm. Elles sont toutes détectées, mais la vitesse mesurée ne peut être déterminée entre 24 et $35\ \text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$. Les longueurs déduites sont comprises entre 75 et 160 µm. Ces valeurs demeurent dans le bon ordre de grandeur, mais une électronique plus rapide devient nécessaire pour une caractérisation précise de l'écoulement.

6.3.2 Étude en contraste d'indice

Les mesures précédentes ont été réalisées avec le couple eau-hexadécane, présentant un contraste d'indice de réfraction $\Delta n = n_d - n_c = -0{,}10$. Afin de démontrer la généralité de la méthode, nous avons réalisé des mesures complémentaires sur les deux couples de fluides suivants :

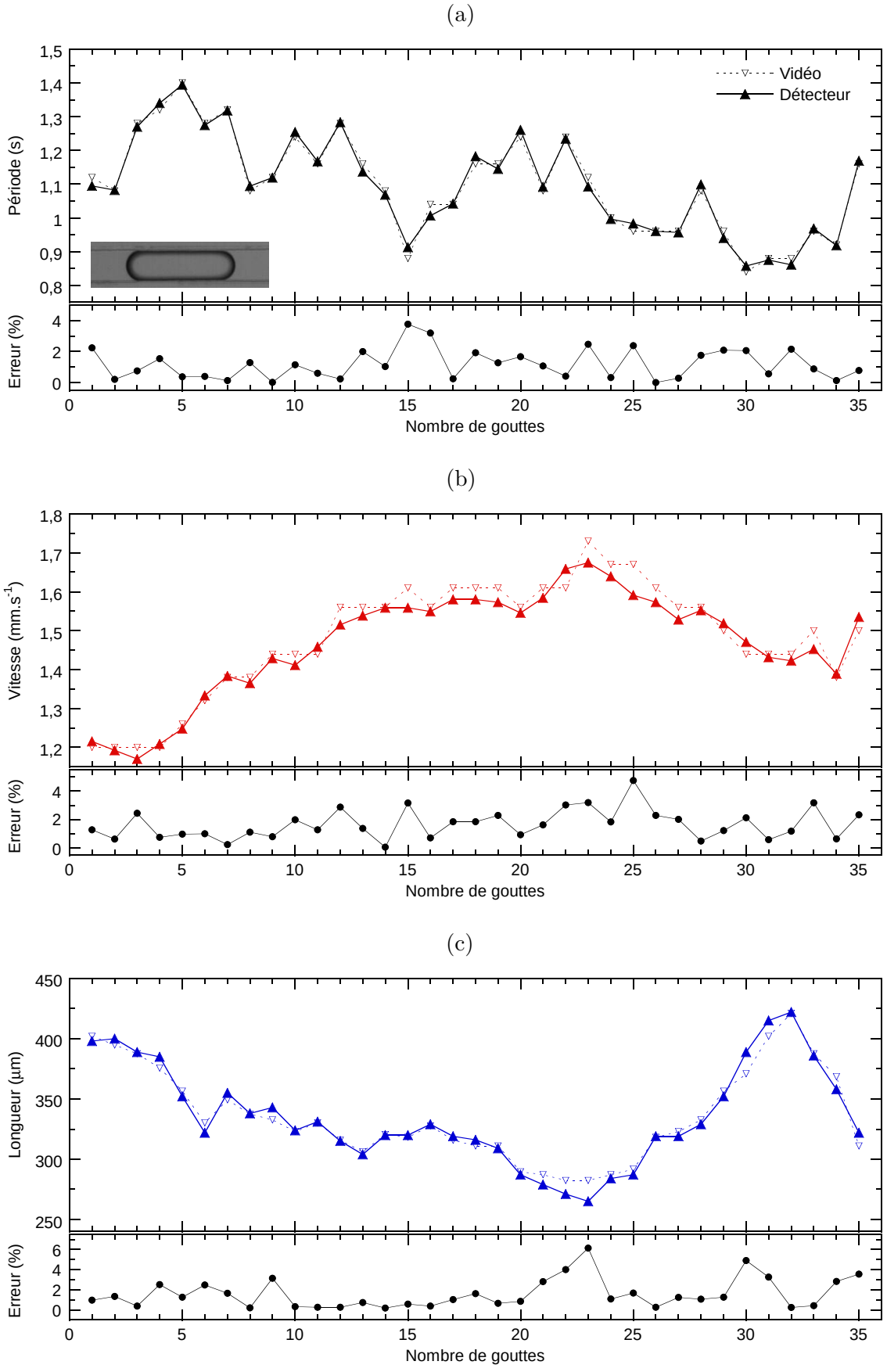

FIG. 6.3 – *Comparaison des mesures faites avec le détecteur* (▲) *à celles tirées de l'analyse vidéo* (▽) *pour un couple de débits modérés* ($Q_c = 0{,}4$ µL · min^{-1}, $Q_d = 0{,}1$ µL · min^{-1}). (a) *Période,* (b) *vitesse et* (c) *longueur des gouttes.*

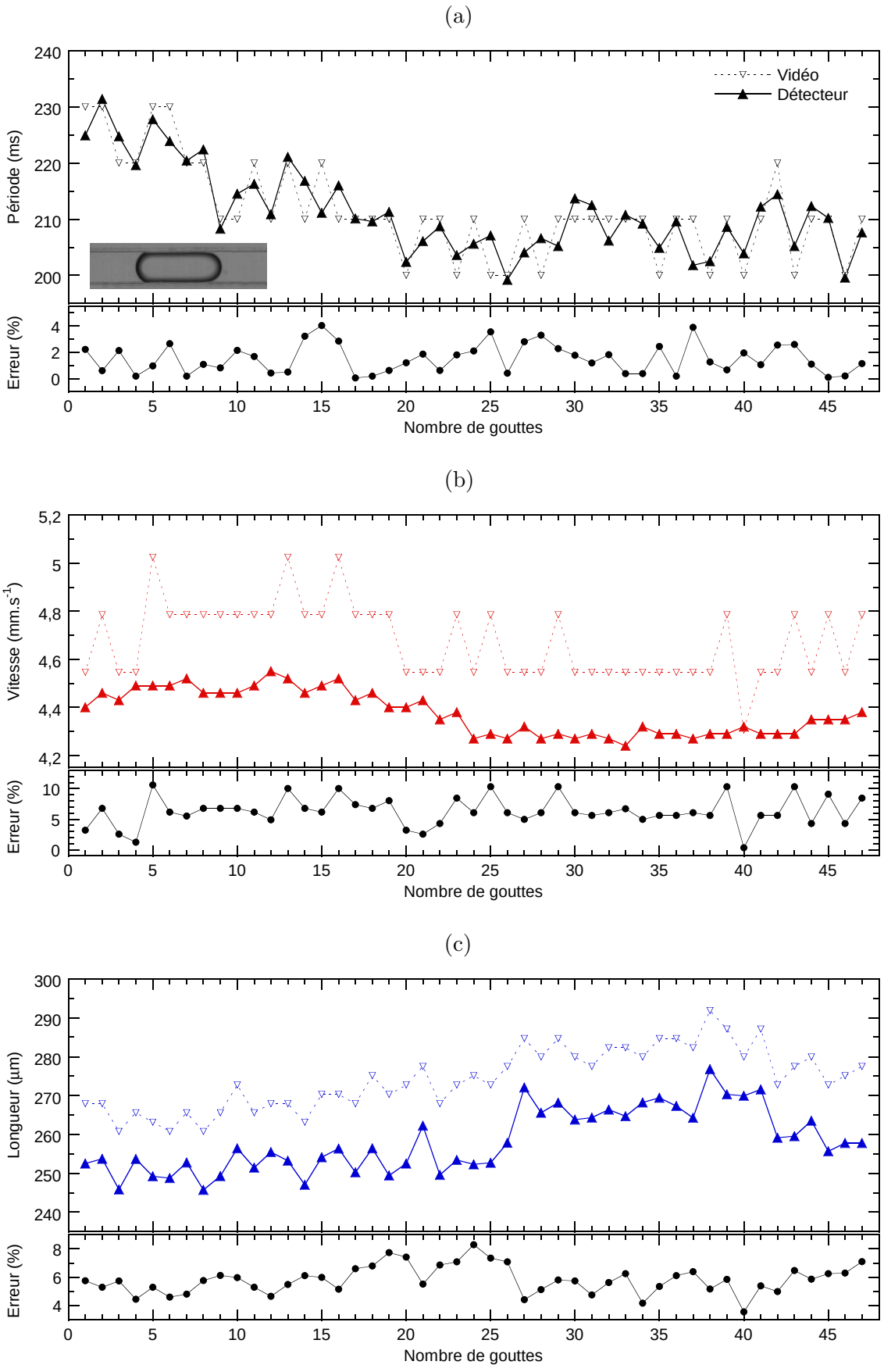

FIG. 6.4 – *Comparaison des mesures faites avec le détecteur* (▲) *à celles tirées de l'analyse vidéo* (▽) *pour un couple de débits intermédiaires* ($Q_c = 1{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, $Q_d = 0{,}4\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$). (a) *Période,* (b) *vitesse et* (c) *longueur des gouttes.*

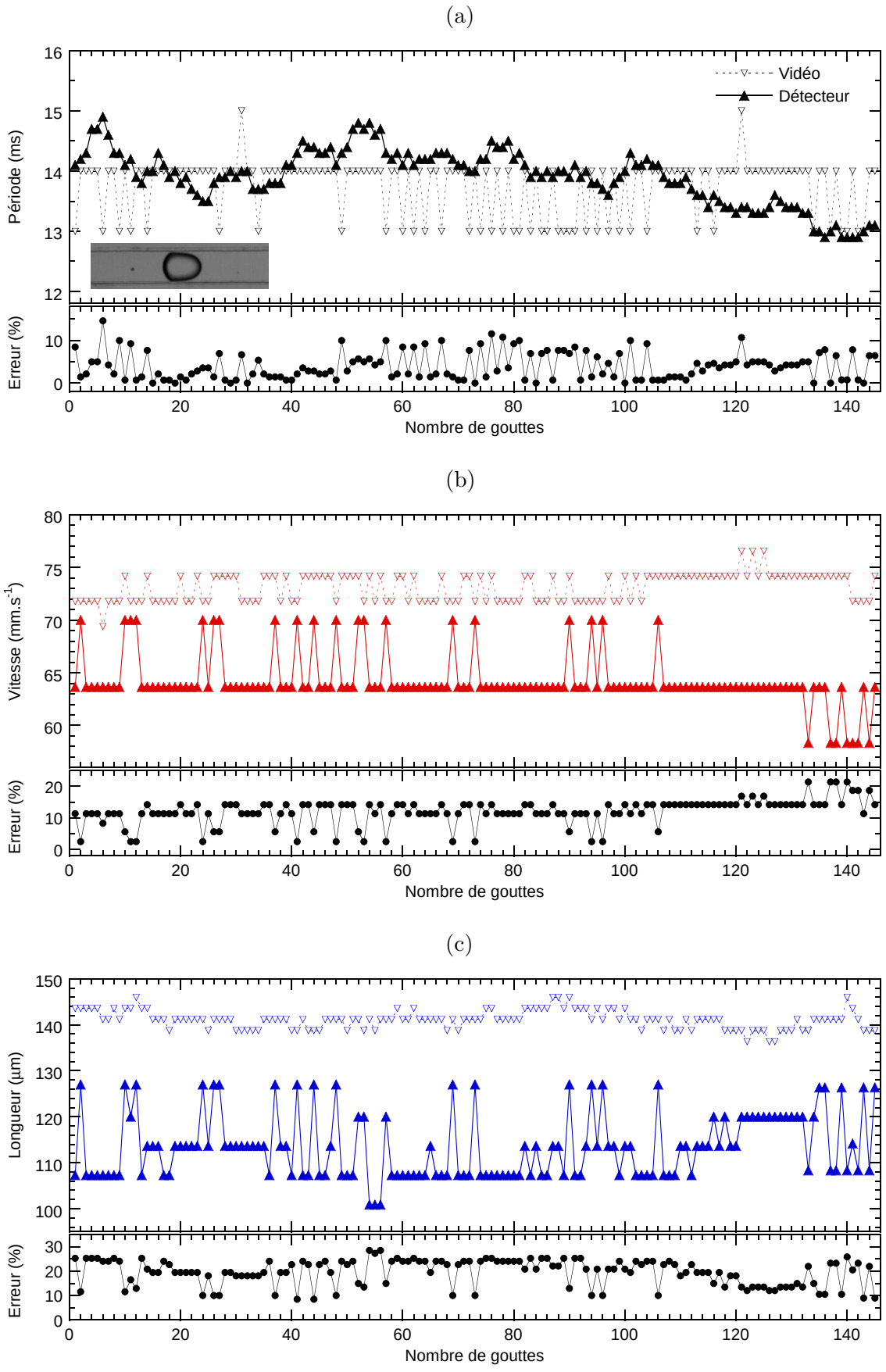

FIG. 6.5 – *Comparaison des mesures faites avec le détecteur* (▲) *à celles tirées de l'analyse vidéo* (▽) *pour un couple de débits élevés* ($Q_c = 25\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, $Q_d = 2{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$). (a) *Période,* (b) *vitesse et* (c) *longueur des gouttes.*

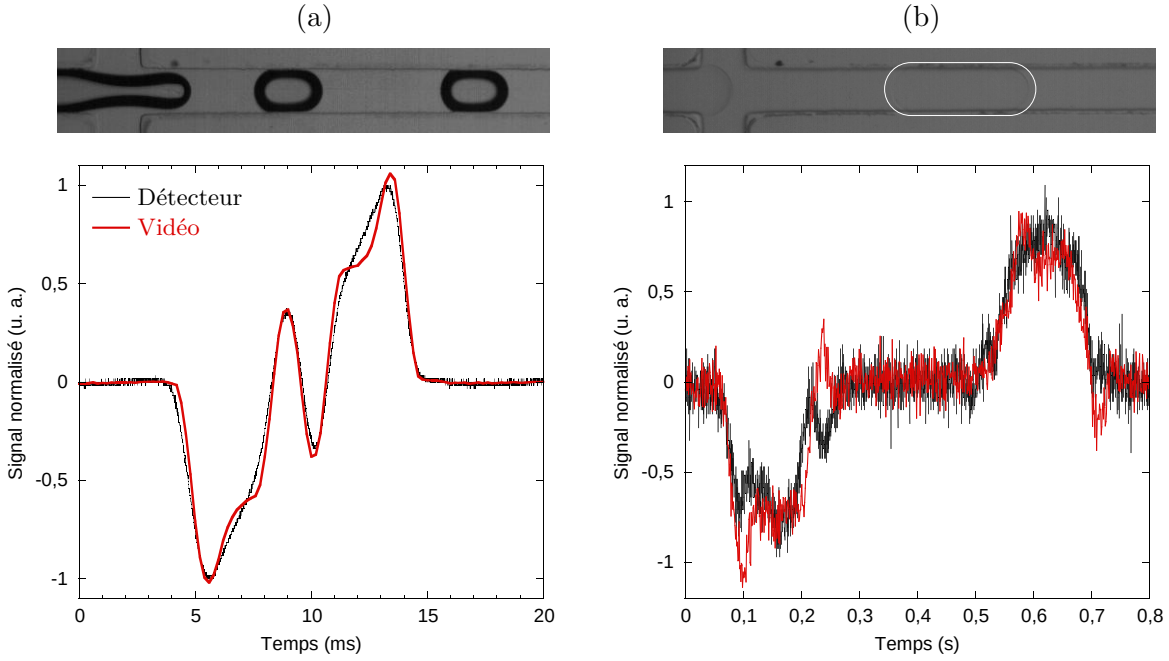

Fig. 6.6 – *Images représentatives de l'écoulement* (a) *d'une bulle de gaz (argon) et* (b) *d'une goutte d'eau sucrée (entourée) dans l'huile, et signal détecté correspondant. Les conditions d'injection sont les suivantes :* (a) *débit d'huile* $Q_c = 7{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, *le gaz est injecté,* via *un détendeur, depuis une bouteille pressurisée ;* (b) *débit d'huile* $Q_c = 0{,}2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, *débit d'eau* $Q_d = 0{,}05\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$.

- Des bulles de gaz (argon) dans l'hexadécane. Le gaz est injecté dans le microcanal depuis une bouteille pressurisée, par l'intermédiaire d'un détendeur. L'indice du gaz étant plus petit que celui de l'eau, le contraste est renforcé : $\Delta n = -0{,}43$.
- Des gouttes d'eau sucrée dans l'hexadécane. L'ajout de sucrose — ici du sucre en poudre issu de la grande distribution — dans l'eau augmente fortement sa viscosité, comme nous le verrons plus loin (chapitre 7), et son indice. La concentration de la solution — 60 % massique — est choisie de sorte qu'elle présente un indice de réfraction très légèrement supérieur à celui de l'huile : $\Delta n < 0{,}01$. Le contraste entre les deux phases est donc fortement diminué. D'autre part, la lumière incidente est réfractée par le ménisque, qui n'apparaît donc pas ombré.

La figure 6.6 illustre ces deux exemples, et présente les signaux correspondants, mesurés par le détecteur et par intégration des niveaux de gris sur la vidéo.

Le signal correspondant à la bulle de gaz (figure 6.6 (a), ici dans le cas d'une bulle courte) est très bien défini. En effet, du fait du fort contraste d'indice, le rapport signal à bruit est très important. Dans le cas de la goutte d'eau sucrée (figure 6.6 (b)), le très faible contraste conduit à un signal beaucoup plus bruité.

Les caractéristiques de l'écoulement mesurées par le détecteur et issues de l'analyse des images [1] sont représentées sur la figure 6.7.

La série de graphes du haut représente les données correspondant aux bulles de gaz. Dans les conditions d'injection imposées ici ($Q_c = 2{,}5\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$), les bulles sont émises par paire : deux bulles se succèdent à intervalle de l'ordre de 0,2 s, puis le gaz se rétracte, la bulle suivante étant émise environ 2 s plus tard. La vitesse de l'écoulement, de l'ordre de $6\ \text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$, varie notablement

1. Pour les gouttes d'eau sucrée, le faible contraste rend la détection automatique des contours peu fiable. La caractérisation de l'écoulement à partir des images a donc été réalisée manuellement.

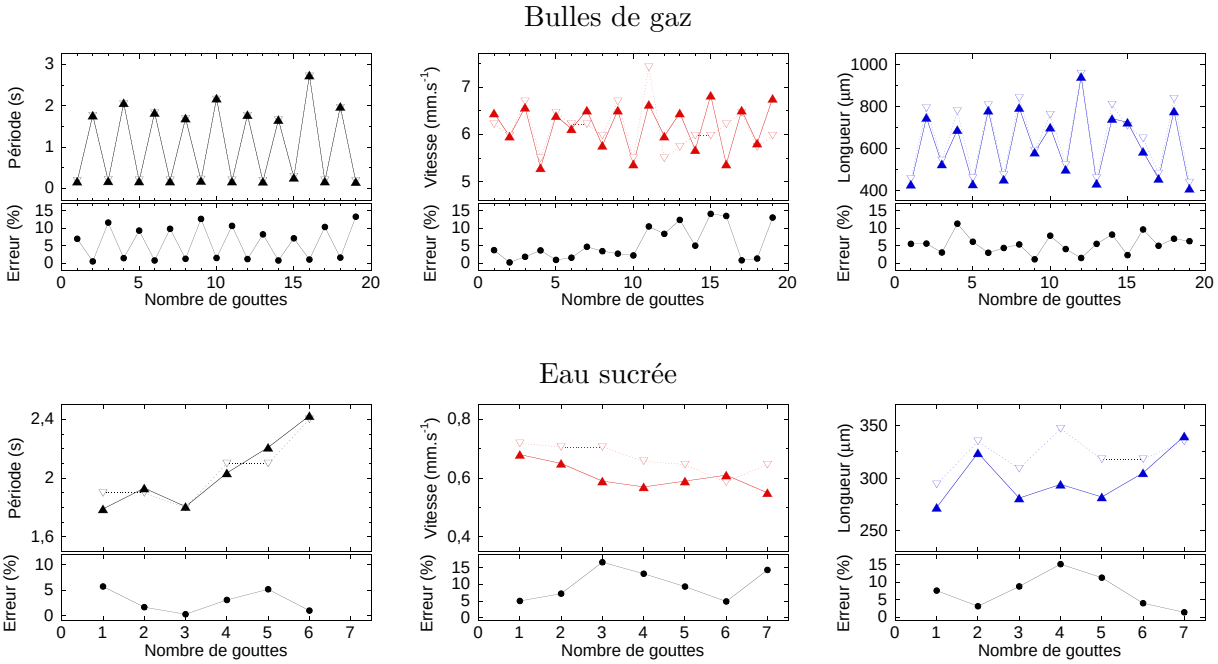

FIG. 6.7 – *Comparaison des mesures faites avec le détecteur* (▲) *à celles tirées de l'analyse vidéo* (▽) *pour des bulles de gaz et pour des gouttes d'eau sucrée.*

d'une bulle à l'autre : du fait de la compressibilité du gaz, la vitesse dépend fortement du nombre de bulles dans le canal. On observe également des fluctuations très fortes de la taille des bulles, qui varie entre 400 et 950 µm.

Les deux mesures de période semblent en excellent accord. L'erreur est plus importante (typiquement 10 à 15 %) dans le cas des bulles rapprochées car la cadence d'enregistrement de la vidéo est relativement réduite. L'accord demeure satisfaisant — du même ordre que l'accord obtenu avec les gouttes d'eau dans des conditions d'écoulement comparables (figure 6.4) — pour les mesures de la vitesse et de la longueur.

Les mesures relatives aux gouttes d'eau sucrée sont représentées sur la série de graphes du bas. Les conditions imposées sont les mêmes que sur la figure 6.6 (b). Elles conduisent à l'émission de gouttes lentes (vitesse inférieure au $\mathrm{mm} \cdot \mathrm{s}^{-1}$), de taille assez régulière. Si l'accord entre les deux méthodes de mesure est moins bon que dans le cas des gouttes d'eau pure dans des conditions de débits comparables (figure 6.3), il demeure cependant très satisfaisant compte tenu de la faiblesse du contraste entre les deux phases.

6.4 Applications

La validité de la méthode ouvre des perspectives de caractérisation jusqu'alors inexplorées. Nous montrons ici, à titre d'exemple, la caractérisation d'écoulements sur des temps très longs, et l'étude de régimes transitoires.

6.4.1 Caractérisation d'écoulements aux temps longs

La stabilité des écoulements microfluidiques sur des temps longs constitue un élément fondamental tant pour leur usage en qualité d'objet d'étude que dans le cadre de procédés industriels. Les mesures que nous avons faites à l'échelle de la dizaine d'heures — une nuit, soit plus de 200 000 gouttes — montrent que cette stabilité est loin d'être un fait acquis en dépit de conditions d'injection imposées.

La figure 6.8 présente les caractéristiques (fréquence de passage, vitesse, longueur) de trois populations de gouttes, obtenues avec des pousse-seringues différents, et à des couples de débits

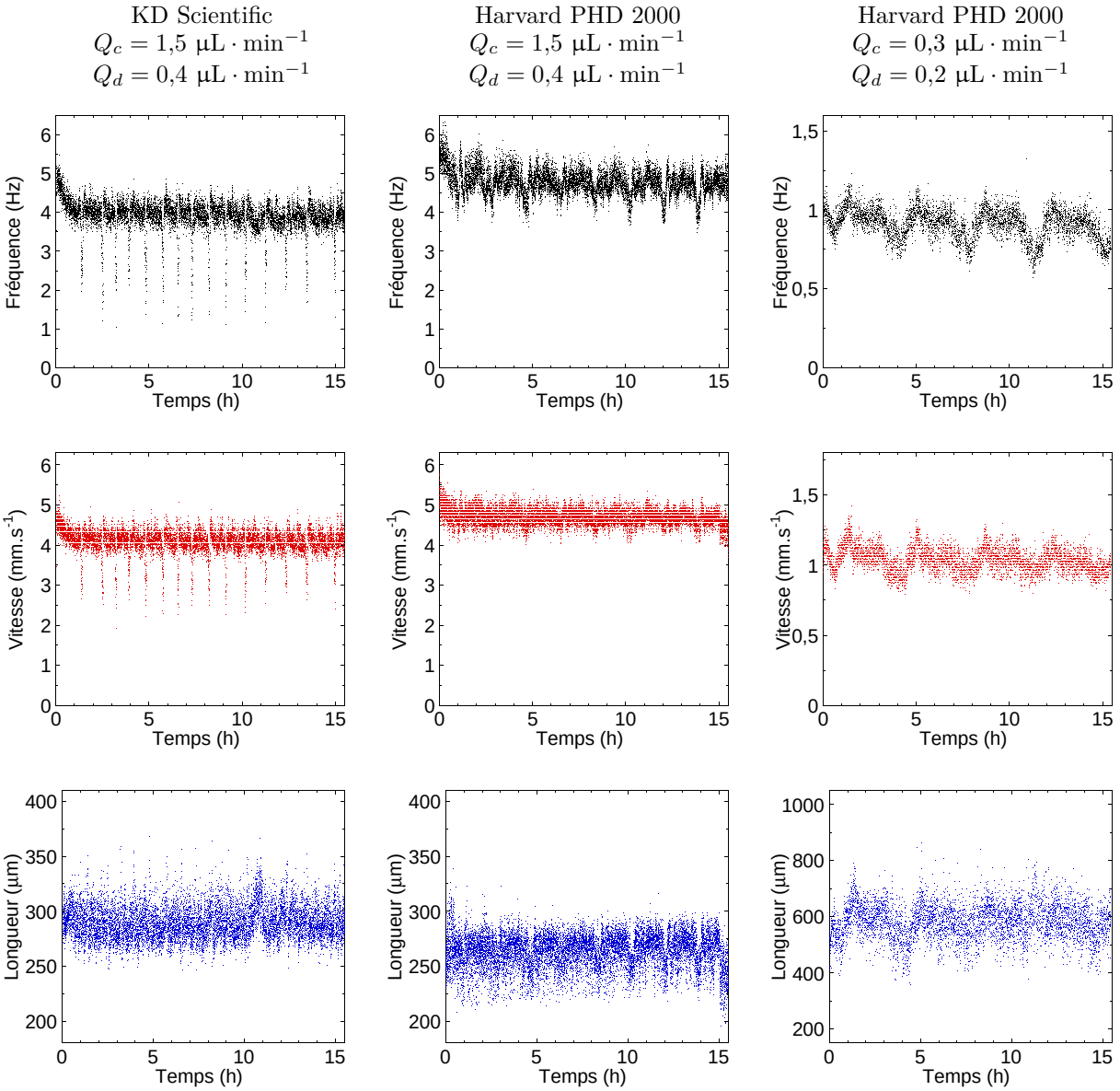

Fig. 6.8 – *Caractérisation sur une longue durée d'un écoulement à débits imposés, pour différents pousse-seringues (KD Scientific ou Harvard Apparatus PHD 2000), et différents couples de débits.*

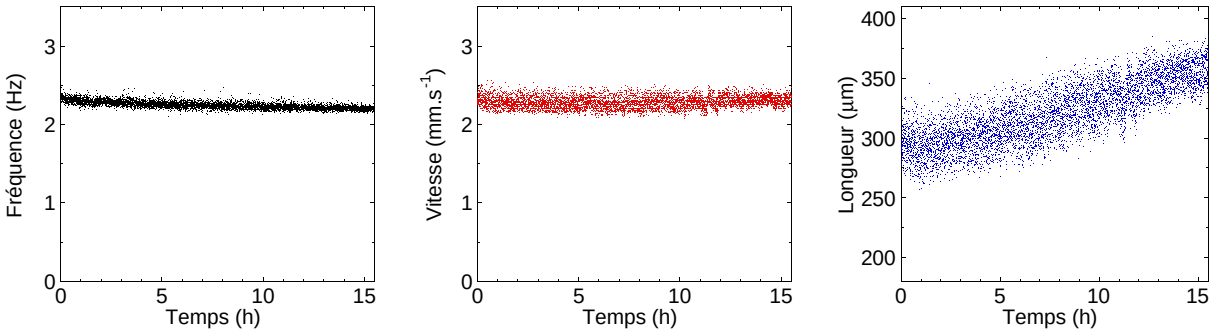

Fig. 6.9 – *Caractérisation sur une longue durée d'un écoulement à pression imposée. Les pressions initiales sont* $\Delta p_c = 2\,502$ Pa *pour l'huile et* $\Delta p_d = 2\,350$ Pa *pour l'eau ; après* 16 h, *la pression d'huile a diminué de* 99 Pa, *celle d'eau de* 49 Pa.

différents. La série de courbes de gauche a été réalisée avec deux pousse-seringues KD Scientific, avec les conditions de débits de la figure 6.4. Aux fluctuations de temps courts, souvent observées dans cette gamme de débits (voir par exemple sur la figure 6.4) et qui conduisent à une forte dispersion des valeurs mesurées, s'ajoutent les comportements de long terme suivants. Au cours de la première heure, on observe une petite réduction de la fréquence et de la vitesse des gouttes. Les valeurs de ces deux grandeurs semblent ensuite se stabiliser, mais on observe au cours de la nuit une succession remarquable d'événements durant lesquels les gouttes sont plus lentes et moins fréquentes. Ces événements se produisent de manière périodique, toutes les heures environ, et durent typiquement quelques minutes. La taille des gouttes suit également, dans une moindre mesure, cette fluctuation, les gouttes étant alors plus longues.

Cette caractérisation a été refaite, avec les mêmes débits, avec deux autres pousse-seringues (Harvard Apparatus PHD 2000). Elle est représentée sur la série de courbes du centre de la figure 6.8. La comparaison de ces données avec les précédentes montre que les caractéristiques de l'écoulement ne sont pas exactement identiques, bien que les débits fixés soient les mêmes. Cet écart peut être attribué à une différence d'étalonnage des pousse-seringues, sans exclure cependant d'autres causes, telles que des variations d'élasticité de la tubulure ou du PDMS avec la température de la pièce. On remarque également que l'écoulement présente, ici encore, des fluctuations périodiques. Celles-ci sont atténuées par rapport au cas précédent, et elles se manifestent essentiellement par une réduction de la fréquence de passage des gouttes. La période de ces fluctuations est de l'ordre de 2 h. Enfin, contrairement au cas précédent, on observe ici que les gouttes sont plutôt plus courtes lors des pics de basse fréquence.

Un autre couple de débits ($Q_c = 0{,}3\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $Q_d = 0{,}2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$) a été caractérisé avec ces pousse-seringues. Les données correspondantes sont représentées sur la série de courbes de droite de la figure 6.8. Le débit d'huile étant plus faible, la production de gouttes est moins fréquente, et leur écoulement, dû exclusivement à l'advection par l'huile, est plus lent. En revanche, le rapport des débits $\frac{Q_d}{Q_c}$ est plus grand que dans le cas précédent, ce qui conduit à la formation de gouttes plus grandes. Dans ce cas, on observe très nettement des fluctuations sur la fréquence d'émission, sur la vitesse et sur la longueur des gouttes. Ces fluctuations présentent un cycle de grande amplitude, d'une période voisine de 4 h, avec un événement de moindre amplitude à la moitié du cycle.

Afin de savoir si ces comportements sont spécifiques des écoulements en débit, nous avons également caractérisé un écoulement à pression imposée (figure 6.9), en fixant initialement les valeurs de la pression d'huile à $\Delta p_c = 2\,502$ Pa et de la pression d'eau à $\Delta p_d = 2\,350$ Pa. La fréquence de passage et la vitesse des gouttes sont remarquablement régulières, et les mesures apparaissent assez peu dispersées. La longueur des gouttes croît de façon régulière au cours du temps. Cette évolution peut être due à la diminution de pression qui résulte de la consommation du fluide initialement présent dans le réservoir. Après 16 h d'écoulement, la baisse des niveaux a ainsi entraîné une baisse de pression d'huile de 99 Pa, et une baisse de pression d'eau de 49 Pa. L'augmentation du rapport des pressions $\frac{\Delta p_d}{\Delta p_c}$ qui en résulte doit entraîner une augmentation de la taille des gouttes produites, conformément à ce qui est observé.

La production de gouttes présente donc, à débits imposés, des fluctuations périodiques dont les caractéristiques dépendent du type de pousse-seringues et des débits imposés, mais dont l'existence en semble indépendante. Si l'étude de ce comportement dépasse le cadre de ce travail, elle constitue une perspective d'application de notre dispositif d'intérêt fondamental pour la microfluidique diphasique.

6.4.2 Réponse de l'écoulement à un changement de régime

Les applications microfluidiques sont généralement développées en régime d'écoulement stationnaire. Cependant, la réponse de l'écoulement à une modification des conditions imposées n'est jamais instantanée et passe par un régime transitoire. Bien qu'assez peu étudiés, ces ré-

gimes transitoires peuvent avoir une durée significative, jusqu'à plusieurs dizaines de minutes dans le cas de fluides très visqueux. Trois cas sont présentés, à titre d'exemple, dans cette section.

Sur la figure 6.10 sont représentées les caractéristiques de l'écoulement lors d'une variation brutale des débits imposés. La durée de cette modification est imposée par le temps de réponse des moteurs des pousse-seringues au changement de la valeur de consigne et peut être considérée quasi-instantanée. L'instant correspondant est fixé à $t = 0$.

La série de graphes du haut correspond au cas où les débits de consigne d'huile et d'eau passent respectivement de 0,4 à 25 $\mu\mathrm{L} \cdot \mathrm{min}^{-1}$ et de 0,1 à 2,5 $\mu\mathrm{L} \cdot \mathrm{min}^{-1}$. Les débits initiaux sont ceux de la figure 6.3, la modification des débits conduit à ceux de la figure 6.5, ce qui implique une modification de la période et de la vitesse des gouttes dont l'amplitude couvre deux décades. Le changement de débits est suivi d'une période d'environ 15 s où la production de gouttes est très irrégulière : des événements de plusieurs secondes sans goutte sont suivis du passage d'un train de gouttes très rapprochées. Les caractéristiques de l'écoulement se stabilisent à l'issue de cette période.

La série de graphes du bas de la figure 6.10 correspond à une réduction des débits symétrique du cas précédent. L'augmentation de la période des gouttes et le ralentissement de l'écoulement sont beaucoup plus réguliers que lors de l'augmentation des débits. Un régime d'écoulement transitoire, pendant lequel les caractéristiques des gouttes varient de façon monotone, peut être défini. La durée de ce régime est environ 30 s, mais la taille des gouttes fluctue encore fortement sur des temps plus longs.

Ces deux cas montrent que la réponse d'un écoulement imposé en débits à une augmentation brutale des valeurs de consigne n'est pas symétrique d'une diminution équivalente des débits.

La deuxième situation correspond à un écoulement en pression (figure 6.11). Contrairement au cas précédent, il est impossible de faire varier la pression hydrostatique sur plusieurs ordres de grandeur, et la durée de la modification des pressions imposées dépend du temps de manœuvre des réservoirs, quelques secondes typiquement. Ainsi, les variations considérées dans ce cas sont moins brutales et ont une amplitude plus faible que celles considérées dans l'exemple en débit.

Sur la série de graphes du haut, les pressions d'huile et d'eau sont initialement fixées à 1 566 et 1 699 Pa respectivement. Ces conditions conduisent à la production, toutes les 1,4 s environ, de gouttes millimétriques s'écoulant lentement ($\simeq 1{,}2\ \mathrm{mm} \cdot \mathrm{s}^{-1}$). À l'instant $t = 0$, le réservoir d'huile est élevé, portant la pression correspondante à la valeur de 1 869 Pa supérieure à celle de la pression d'eau. La longueur des gouttes est réduite d'un facteur 4, leur vitesse et leur fréquence de passage sont pratiquement doublées. L'échelle de temps associée à la modification des caractéristiques de l'écoulement, environ 10 s, est la même que celle de la modification des valeurs de consigne. L'écoulement suit donc la variation des pressions imposées.

La série de courbes du bas correspond à un cas où les deux réservoirs sont descendus simultanément : la pression d'huile passe de 3 632 à 1 964 Pa, la pression d'eau passe de 3 392 à 2 007 Pa. La variation des pressions de consigne est donc plus significative que dans le cas précédent, sans représenter cependant un changement d'ordre de grandeur. Ici encore, les caractéristiques de l'écoulement suivent la variation des pressions imposées, pendant lesquelles des gouttes anormalement longues sont momentanément produites. Par ailleurs, après cette modification, on remarque que la période et la longueur des gouttes décrivent des oscillations qui s'amortissent sur une échelle de temps de 20 s environ. Un régime d'écoulement transitoire, différent de ceux observés sur la figure 6.10 dans le cas d'écoulements en débits, est donc mis en évidence ici.

La réponse de l'écoulement à une modification des conditions imposées peut donc suivre des dynamiques diverses, selon que l'écoulement est imposé en débit ou en pression, et selon la dynamique de modification des valeurs de consigne. L'étude expérimentale de ces régimes transitoires permettrait peut-être d'approfondir l'analogie théorique entre circuits électriques et

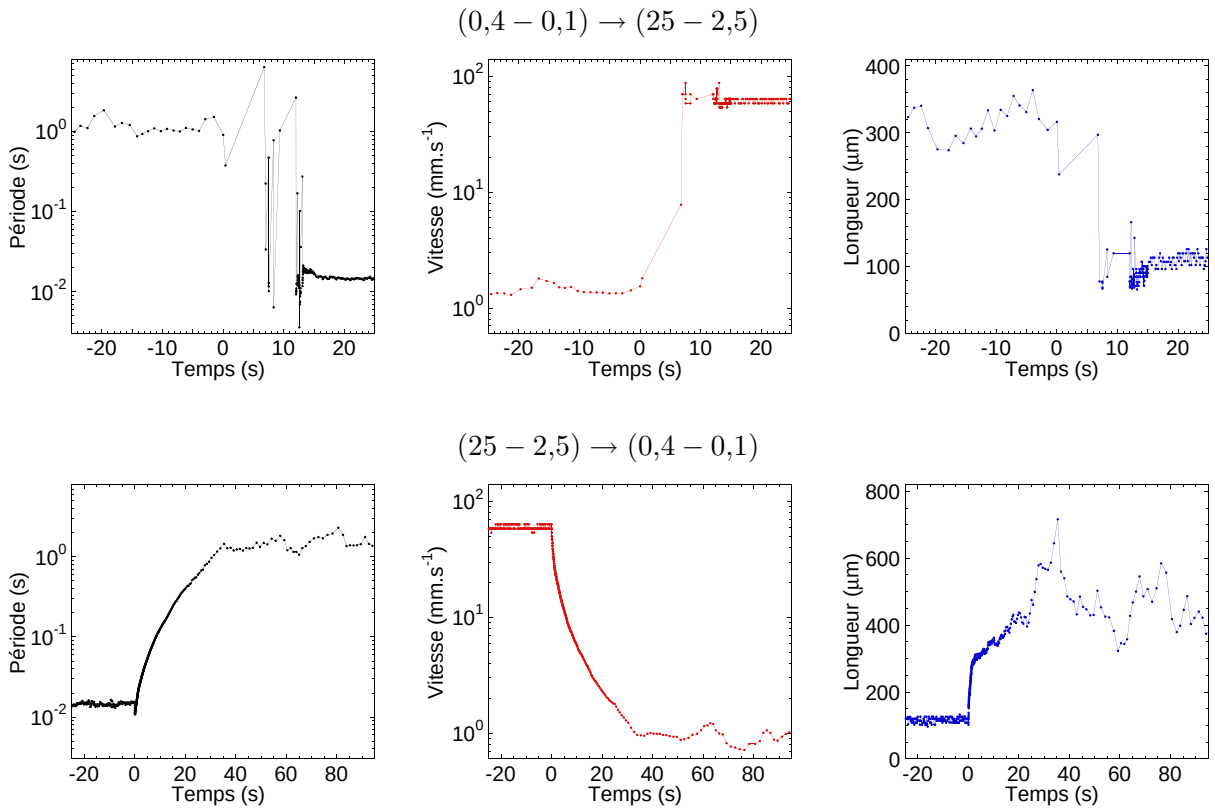

FIG. 6.10 – *Caractérisation d'un écoulement en débit lors d'une modification brutale des débits. Les valeurs des débits (respectivement Q_c et Q_d) sont indiquées en* $\mu\mathrm{L}\cdot\mathrm{min}^{-1}$.

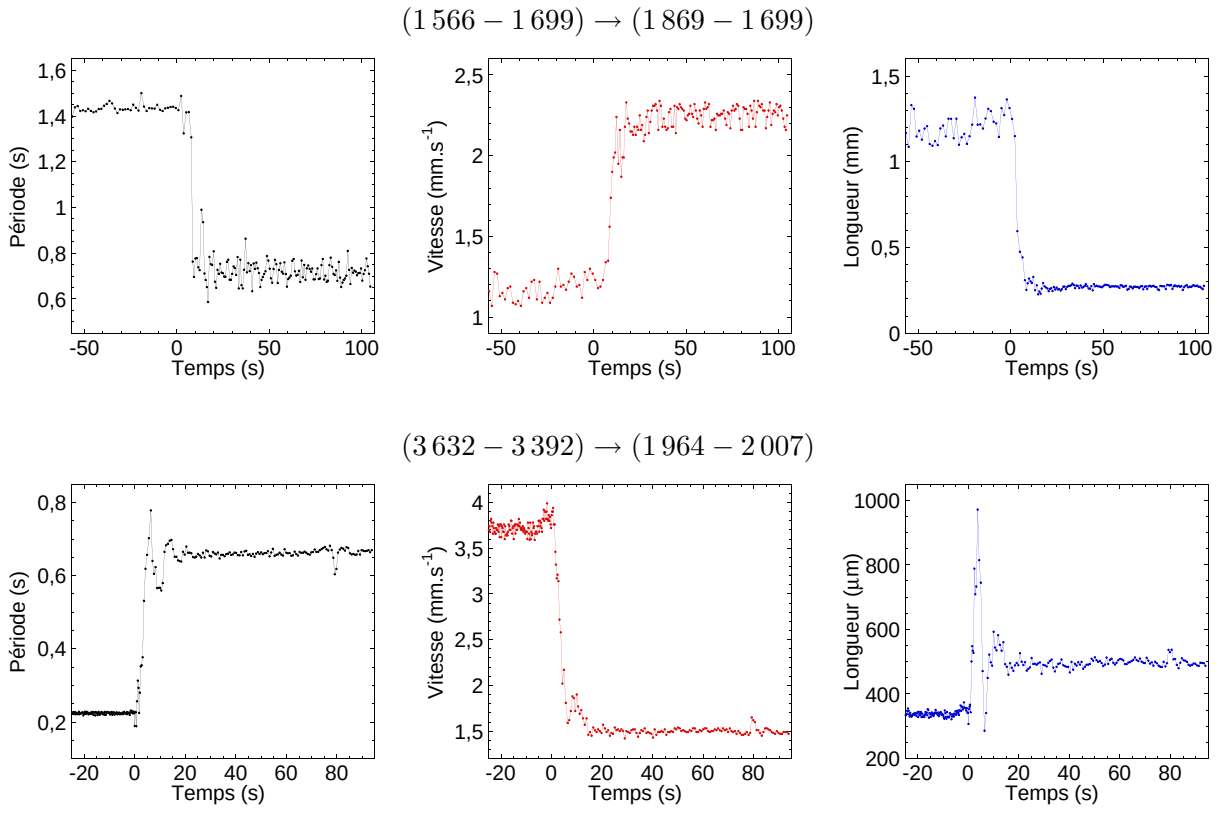

FIG. 6.11 – *Caractérisation d'un écoulement en pression lors d'une modification de la hauteur des réservoirs. Les valeurs des pressions (respectivement Δp_c et Δp_d) sont indiquées en* Pa.

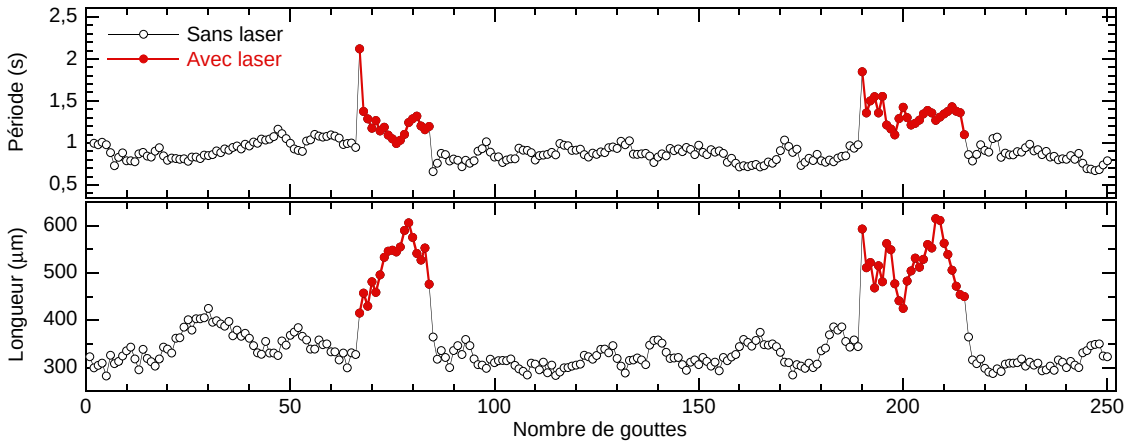

Fig. 6.12 – *Mise en évidence des modifications de l'écoulement résultant d'un blocage thermocapillaire. Les conditions expérimentales sont les suivantes :* $Q_c = 0{,}4\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, $Q_d = 0{,}1\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, $P = 56$ mW, $\omega_0 = 5{,}16\ \mu$m.

canaux microfluidiques dans le cas des écoulements diphasiques discrets [186].

Les conditions d'écoulement peuvent également être modifiées par un forçage externe : on a notamment montré au chapitre 4 le blocage thermocapillaire de gouttes au cours de leur formation. À débits imposés, ce blocage conduit à l'émission de gouttes plus longues, à une fréquence réduite. Comme on l'a vu précédemment, l'écoulement stationnaire comporte de nombreuses fluctuations inhérentes au système (voir par exemple la figure 6.3). Ainsi, l'écart à l'écoulement stationnaire engendré par le blocage thermocapillaire est-il significatif au regard des fluctuations de l'écoulement ?

La figure 6.12 représente la période de passage et la longueur des gouttes d'une population statistiquement significative (aux fluctuations de long terme près). Le laser est allumé à deux reprises, bloquant successivement 18 et 26 gouttes. Ces deux populations sont représentées en symboles pleins sur la figure 6.12 : elles se démarquent nettement des gouttes non bloquées. Malgré la forte dispersion des caractéristiques individuelles de chaque goutte, de toute façon inévitable dans cette gamme de débits, l'utilisation du blocage thermocapillaire comme calibreur de l'écoulement s'en trouve justifiée *a posteriori*.

Dans ce chapitre, nous avons présenté un nouveau dispositif permettant de caractériser des écoulements diphasiques à petite échelle. Le principe de la mesure est basé sur une interprétation, en termes de contraste de lumière, du signal différentiel au passage de l'image d'une goutte devant deux photodiodes montées en inverse. La détection n'est donc pas limitée par les propriétés optiques ou la taille des objets mesurés. Des perspectives d'étude hors de portée des dispositifs préexistants sont donc ouvertes, telles que la caractérisation d'écoulements transitoires, ou sur des temps très longs. En outre, la caractérisation de l'écoulement se fait en temps réel, permettant une utilisation à des fins de réglage par exemple. La mesure de contrastes de lumière devrait par ailleurs permettre de différencier des objets de nature différente, et pourrait ainsi être appliquée au suivi de réactions chimiques au sein de gouttes.

L'efficacité du dispositif a été validée jusqu'à des cadences de l'ordre de la centaine de Hz. Les développements actuels visent à étendre son domaine de fonctionnement jusqu'à 10 kHz, ce qui le rendrait pertinent pour l'étude des écoulements microfluidiques à haut débit.

D'autre part, ce système se distingue par sa simplicité — aucune électronique sophistiquée n'est requise —, sa compacité et son indépendance vis-à-vis du canal microfluidique utilisé. Il est adapté à un microscope de base et ne nécessite aucune microfabrication dédiée. Son utilisation

est donc particulièrement aisée dans le contexte d'écoulements en microcanal. Une perspective de développement vise à réaliser un démonstrateur pouvant s'insérer à la place d'un oculaire de microscope, afin d'accroître ses potentialités d'utilisation.

Ce dispositif, avec ses caractéristiques actuelles de fonctionnement, a fait l'objet d'une demande de brevet [187].

Chapitre 7

Brisure d'un jet laminaire forcée par laser

Au chapitre 4, nous avons démontré la possibilité de contrôler optiquement le processus de formation des gouttes à débit modéré. Par ailleurs, nous avons ensuite montré que le même effet permet d'envisager un contrôle de la cinématique des gouttes, y compris à des débits plus importants (chapitre 5). Dans ce chapitre, nous montrons que la formation des gouttes peut également être contrôlée à grand débit, avec une approche complémentaire. Cette approche est basée sur la déstabilisation d'un jet d'eau dans l'huile forcée par la déformation thermocapillaire de l'interface.

Après une présentation du mécanisme d'instabilité à l'origine de la brisure d'un jet laminaire, la dynamique de déformation de l'interface sera caractérisée. Cette déformation peut conduire à la rupture de l'interface : la transition entre les régimes d'écoulement sous forme de jet et sous forme de gouttes, ainsi que les gouttes ainsi formées, sont ensuite caractérisées à l'aide du dispositif présenté au chapitre 6.

7.1 Déstabilisation et rupture de cylindres liquides

La déstabilisation d'une colonne liquide sortant d'un orifice, telle que le jet d'eau d'un robinet (figure 7.1), a été décrite de manière remarquablement précise dès 1833 par Savart [188] :

> Il n'est personne qui n'ait observé que les veines liquides, lancées verticalement de haut en bas, se composent de deux parties d'un aspect très différent : que l'une, qui touche à l'orifice, est limpide, transparente, et en apparence immobile ; que la seconde, qui est d'un plus grand diamètre, a un aspect louche, comme laiteux, et qu'elle est recouverte de nodosités qui changent continuellement de forme et de position. [...]
>
> [À] partir du point où le jet cesse d'être limpide et calme, il cesse également d'être continu, ce qu'on peut prouver en observant qu'un corps mince et étroit qu'on fait passer rapidement à travers la partie trouble et perpendiculairement à son axe n'est presque jamais mouillé (F. Savart, référence [188]).

Savart observe ainsi que la topologie de l'écoulement change de manière irréversible au cours du temps, l'écoulement initialement continu devenant discret. Il constate que la brisure du jet résulte de la croissance d'ondulations de la surface du jet qui se développent dès sa sortie de l'orifice, comme représenté sur l'image de droite de la figure 7.1. Enfin, il remarque que ce phénomène se produit indépendamment de la direction de l'écoulement : bien que n'ayant pas identifié le mécanisme à l'origine de l'instabilité du jet, Savart montre ainsi qu'elle est intrinsèque au fluide.

L'ensemble des phénomènes mis en jeu, de la déstabilisation du jet à sa rupture, a déjà fait l'objet d'une littérature abondante, et certaines questions demeurent d'actualité. Cette section en présente un aperçu synthétique, en introduction aux situations expérimentales étudiées dans

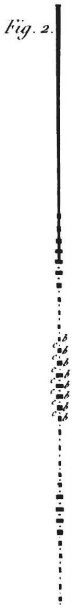

FIG. 7.1 – *Observation de la déstabilisation d'un jet. Sur l'image de droite est représentée une succession de gouttes formées suite à la déstabilisation spontanée du jet, telle qu'observée par Savart* [188].

ce chapitre. Le lecteur intéressé trouvera dans les références [168, 189] une revue approfondie de l'ensemble du sujet.

7.1.1 Origine de l'instabilité

Dans un mémoire publié quarante ans après les travaux de Savart, Plateau attribue l'existence des ondulations observées à la surface du jet à la tension de surface [190]. Il observe que le jet se rompt spontanément en gouttes sphériques lorsque sa longueur dépasse une valeur comprise entre 3 et 3,6 fois son diamètre. La forme cylindrique étant caractérisée par une surface libre importante à volume de liquide donné, une perturbation conduisant le jet à adopter une géométrie sphérique permettrait de minimiser l'énergie de surface. Plateau calcule donc la variation d'aire induite par une perturbation sinusoïdale, et établit que les perturbations axisymétriques dont la longueur d'onde est supérieure au périmètre du jet conduisent à une réduction de surface. Il explique ainsi la limite de stabilité du cylindre. Cependant, la minimisation de l'énergie de surface devrait conduire à la formation d'une sphère unique dont le volume est égal à celui du cylindre initial. La brisure en gouttes multiples résulte donc d'un compromis entre la tension de surface et un effet antagoniste.

En tenant compte de l'inertie du fluide, qui s'oppose à la déstabilisation capillaire de l'interface, Lord Rayleigh parvient à décrire théoriquement la formation de gouttes multiples [191–193]. Il considère pour cela un cylindre liquide non visqueux, de longueur infinie et de rayon moyen R_0, dont la surface est soumise à de petites perturbations sinusoïdales. Dans une approximation linéaire, on peut écrire le rayon $R(z,t)$ du jet suivant la direction z de l'écoulement comme

$$R(z,t) = R_0 \left(1 - \varepsilon \mathrm{e}^{\mathrm{i}kz+\omega t}\right) \tag{7.1}$$

avec $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ le nombre d'onde associé à une perturbation de longueur d'onde λ et d'amplitude relative ε, et ω le taux de croissance de cette perturbation. Une décomposition de la perturbation sur ses modes de Fourier conduit à la relation de dispersion que Rayleigh a établie,

$$\left(\frac{\omega}{\bar{\omega}}\right)^2 = \frac{\mathcal{I}_1(X)}{\mathcal{I}_0(X)} X \left(1 - X^2\right), \tag{7.2}$$

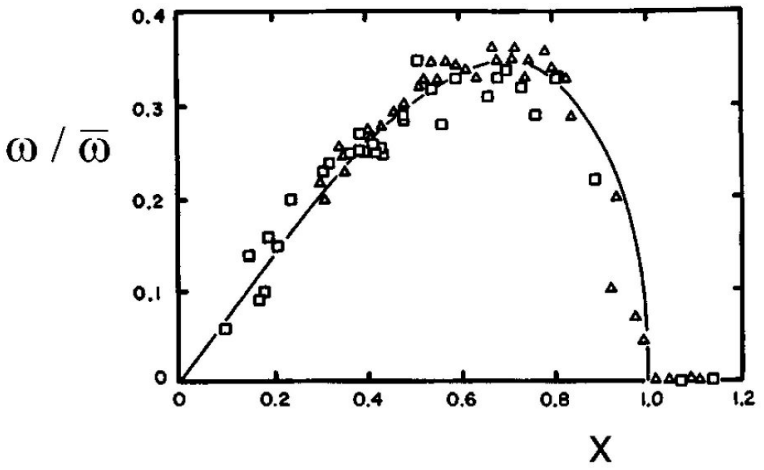

Fig. 7.2 – *Comparaison entre la relation de dispersion obtenue à partir de mesures sur un jet d'eau (symboles) et l'expression théorique* (7.2) *obtenue par Rayleigh (trait continu). Tiré de* [168].

avec $\bar{\omega} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R_0^3}}$, $X = kR_0$ et $\mathcal{I}_i(X)$ la fonction de Bessel modifiée d'ordre i. Cette relation est représentée sur la figure 7.2. Les modes instables, correspondant à ω réel et positif, sont tels que $0 < X < 1$, conformément au calcul de Plateau. D'autre part, le taux de croissance de la perturbation est maximal en $X = 0{,}697$, soit pour $\lambda = 9{,}01R_0$. Ce mode le plus instable domine la dynamique de la perturbation, et fixe ainsi la taille des gouttes formées. Les mesures de Savart sont ainsi retrouvées avec un très bon accord. D'autres mesures, excitant sélectivement les modes d'instabilité à l'aide de haut-parleurs, ont ultérieurement confirmé l'ensemble de la relation de dispersion (figure 7.2). Ce calcul a ensuite été étendu aux fluides visqueux. En 1961, Chandrasekhar a proposé une solution générale à partir de l'équation de Navier-Stokes [194].

Toutes ces études considèrent des jets libres. Le cas d'un jet de viscosité η_1 baignant dans un fluide de viscosité η_2 a été traité par Tomotika [195]. La relation de dispersion obtenue présente une forme similaire à celle obtenue pour un jet libre, mais le mode le plus instable et le taux de croissance correspondant dépendent du rapport des viscosités.

Le mécanisme général de l'instabilité capillaire des jets, aussi appelée instabilité de Rayleigh-Plateau, est ainsi caractérisé pour l'ensemble des cas pertinents. L'instabilité est pilotée par la tension de surface, l'inertie et la viscosité du fluide ayant plutôt un rôle stabilisant. Au chapitre 1, nous avons vu que la tension interfaciale tend à s'opposer à l'arrachement d'un volume de fluide soumis à un cisaillement, phénomène qui conduit à un accroissement de l'aire interfaciale. Elle s'oppose ainsi à la formation de gouttes. Le cas d'un cylindre liquide correspondant à une géométrie à énergie de surface élevée, la tension interfaciale est ici le mécanisme moteur du fractionnement du liquide. Ainsi, selon la configuration, le même mécanisme conduit à des effets opposés.

7.1.2 Développement spatial de l'instabilité

L'analyse présentée au paragraphe précédent ne décrit que le développement temporel de l'instabilité. Comme le fluide se déplace, l'instabilité se développe aussi spatialement. Ce développement spatial est décrit à partir de la théorie des instabilités convectives et absolues [196–198].

Lorsque la vitesse de groupe de l'instabilité est positive, l'instabilité est dite convective. Les perturbations sont alors transportées le long de l'écoulement, et croissent vers l'aval, à l'instar des observations de Savart. Si la vitesse de groupe de l'instabilité est négative, l'instabilité est qualifiée d'absolue. Les perturbations se développent vers l'amont de l'écoulement. Le jet ne peut alors exister : des gouttes se forment dès la sortie de la buse d'injection. Pour des jets libres, ces deux régimes de propagation de l'instabilité ont été suggérés [199] pour expliquer les régimes de

jetting et de *dripping*, présentés au chapitre 1 dans le contexte de la microfluidique diphasique.

L'instabilité absolue ne se produit que lorsque le nombre de Weber, rapport des effets inertiels aux effets capillaires (éq. (1.9)), est petit, rendant son étude difficile à l'échelle macroscopique. Cependant, le nombre de Weber à la transition augmente lorsque les effets gravitationnels diminuent [15]. Les premières caractérisations expérimentales du régime d'instabilité absolue ont donc été réalisées en microgravité [200]. Par ailleurs, la microfluidique permet généralement de négliger l'effet de la gravité et d'obtenir des écoulements à faible nombre de Weber. Elle offre donc des conditions expérimentales privilégiées pour étudier ce régime. Des écoulements absolument instables ont ainsi été obtenus dans des géométries à écoulement parallèle [201] ou à focalisation d'écoulement [29]. Néanmoins, l'interprétation de la transition entre les régimes de *jetting* et de *dripping* à partir du développement spatial de l'instabilité nécessite de tenir compte des effets de viscosité et de la géométrie, déterminante dans ce contexte.

7.1.3 Effet du confinement

En milieu confiné, plusieurs mécanismes sont susceptibles de ralentir, voire d'inhiber totalement le développement de l'instabilité. Le cisaillement imposé par la phase externe peut induire une distorsion non-axisymétrique de l'interface, qui ralentit la croissance de la perturbation [202]. La présence de parois permet également de briser la symétrie de révolution des perturbations. Ainsi, celles-ci ne conduisent plus nécessairement à une réduction de l'aire interfaciale. En particulier, un jet écrasé par des parois, formant un ruban de liquide, est stable vis-à-vis de l'instabilité de Rayleigh-Plateau [203].

Pour étudier l'influence du confinement sur la stabilité de cylindres liquides en s'affranchissant des effets de l'inertie, le groupe de Migler au NIST a utilisé des liquides polymériques newtoniens [204, 205]. Une fibre de polyamide-6 est ainsi placée entre deux films de polystyrène, dans une cellule dont l'épaisseur peut être ajustée. L'ensemble est ensuite chauffé au-delà de la température de fusion des deux polymères. La dynamique d'instabilité est mesurée et comparée à celle prédite par Tomotika [195] en milieu infini. Un ralentissement de la croissance des perturbations, associé à une augmentation de leur longueur d'onde (figure 7.3 (a)), est perceptible lorsque l'épaisseur de la cellule est comprise entre 1,3 et 3 fois le diamètre du cylindre. À plus fort confinement, l'instabilité est totalement inhibée. Ce comportement est interprété en décomposant les perturbations suivant les directions parallèle et perpendiculaire au confinement pour caractériser leur distorsion.

Une autre étude, réalisée dans des canaux microfluidiques de section rectangulaire à grand rapport d'aspect, établit que les jets dont le diamètre est plus grand que la hauteur du canal sont stables [206]. Cette stabilité est indépendante des conditions de débits ou des viscosités des fluides dès lors que ce critère de confinement est vérifié (figure 7.3 (b)). Le degré de confinement du fluide résulte notamment du rapport des débits. Ainsi, des jets stables ou instables peuvent être produits au sein d'un même microcanal, selon les débits imposés.

Également dans un contexte microfluidique, Guillot et coll. ont étudié la stabilité d'écoulements parallèles confinés dans des capillaires cylindriques [207] et dans des canaux rectangulaires [208, 209]. En étudiant le développement spatial de l'instabilité, prenant en compte les effets du rapport des viscosités des deux phases et la géométrie de l'écoulement, ils ont montré que les régimes de *jetting* et de *dripping* peuvent être attribués à la nature convective ou absolue de l'instabilité (figure 7.3 (c)). La transition entre les deux régimes de propagation de l'instabilité dépend très fortement du confinement du jet, comme le montre la courbe de droite de la figure 7.3 (c). Par ailleurs, un domaine de stabilité absolue du jet est mis en évidence en canal rectangulaire, lorsque le jet est aplati par les parois [210, 211].

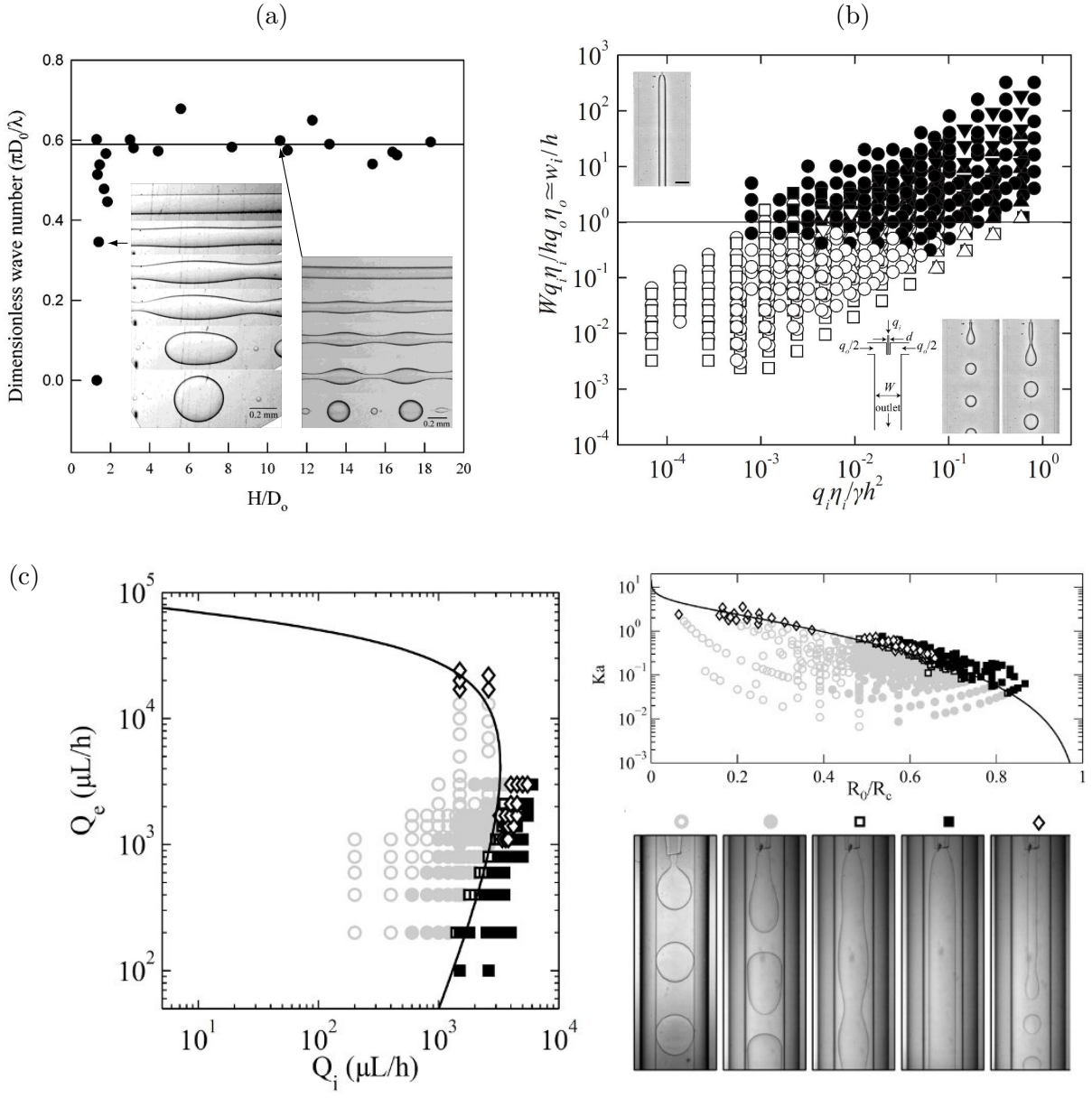

Fig. 7.3 – *Stabilité de jets confinés.* (a) *Jet confiné entre deux plans parallèles : évolution du mode le plus instable de l'instabilité avec le rapport de la distance H entre les deux plans au diamètre D_0 du jet* [205]. *À fort confinement, le mode le plus instable tend vers zéro, correspondant à des perturbations de longueur d'onde infinie : le jet est donc stable. Le trait continu est le mode le plus instable calculé à partir de la théorie de Tomotika en milieu infini compte tenu du rapport de viscosités. Les images en encart représentent la brisure d'un jet confiné ($H/D_0 = 1{,}45$) et d'un jet non confiné ($H/D_0 = 10{,}6$). L'intervalle de temps entre la première et la dernière image est respectivement* 2 315 s *et* 754 s. (b) *Diagramme d'écoulement obtenu dans un microcanal de grand rapport d'aspect* [206]. *L'axe des abscisses correspond au nombre capillaire de la phase interne, l'axe des ordonnées est identifié au rapport du diamètre du cylindre liquide en phase interne, w_i, à la hauteur du canal, h. Les symboles pleins correspondent à des jets stables, les symboles ouverts à des jets instables (régimes de* dripping *et de* jetting*). Les différents symboles correspondent à des rapports de viscosités différents.* (c) *Diagramme d'écoulement dans le plan (Q_d, Q_c) dans des capillaires concentriques* [207]. *Les symboles noirs correspondent aux régimes de jets (stables ou instables), les symboles gris au régime de* dripping. *La ligne continue est la transition théorique entre instabilité convective et absolue. Les mêmes données sont représentées sur la courbe de droite, où l'axe des abscisses représente le confinement du jet (R_c est le rayon du capillaire externe) et l'axe des ordonnées un nombre capillaire construit sur le rayon du capillaire.*

7.1.4 Vers la rupture : dynamique non linéaire

Le régime d'instabilité linéaire présenté jusqu'ici correspond au développement initial d'une perturbation conduisant à la rupture de l'interface. La dynamique associée à ce régime est ainsi fortement dépendante des conditions initiales. La rupture de l'interface représente une singularité qui ne peut être décrite dans le cadre d'une théorie linéaire.

Rupture à surface libre

À l'approche de la rupture, la dynamique se dissocie des échelles caractéristiques de temps et de longueur et peut être décrite à partir des propriétés intrinsèques du fluide [212]. On peut ainsi, dans le cas d'une rupture pilotée par la force capillaire, définir dimensionnellement les échelles spatiale et temporelle

$$\ell_\nu = \frac{\nu^2\rho}{\sigma} \qquad \text{et} \qquad t_\nu = \frac{\nu^3\rho^2}{\sigma^2}, \tag{7.3}$$

avec $\nu = \frac{\eta}{\rho}$ la viscosité cinématique du fluide.

Les caractéristiques du fluide — rayon $R(z,t)$, vitesse $u(z,t)$ — sont ainsi supposées auto-similaires. Elles sont alors développées en série en fonction de la coordonnée radiale, et injectées dans l'équation de Navier-Stokes avec l'hypothèse de lubrification. Au voisinage de la singularité, seuls les termes d'ordre le plus bas demeurent significatifs. La dynamique des grandeurs du système peut alors être exprimée sous forme de lois de puissance universelles [213], dont les exposants sont déterminés par l'équilibre des forces.

Au voisinage de la singularité, lorsque $R \ll \ell_\nu$, le nombre de Reynolds tend vers $\frac{\ell_\nu^2}{t_\nu \nu} = 1$. Les effets inertiels et visqueux ont une amplitude comparable. L'équilibre des contraintes capillaires, inertielles et visqueuses

$$\sigma\frac{\partial R^{-1}}{\partial z} \sim \rho\frac{\partial u}{\partial t} \sim \eta\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \tag{7.4}$$

conduit alors à une dynamique d'évolution du rayon du cou telle que le minimum vérifie

$$R_{min}(t) = 0{,}030\,4\,\frac{\sigma}{\eta}\,(t_0 - t) \tag{7.5}$$

avec t_0 l'instant de rupture. Le profil du cou est asymétrique de part et d'autre du point de rayon minimum. Cette loi correspond au régime universel d'Eggers, valable au voisinage de la singularité pour un fluide à surface libre.

Les valeurs de ℓ_ν et t_ν sont respectivement de l'ordre de 10^{-8} m et 10^{-10} s pour l'eau, rendant ce régime inaccessible à l'observation. Cependant, l'existence du régime d'Eggers a été validée expérimentalement, comme représenté sur la série d'images de gauche de la figure 7.4, avec des fluides plus visqueux, pour lesquels ces échelles sont compatibles avec les moyens expérimentaux actuels.

Le régime d'Eggers correspond à une dynamique pilotée par l'équilibre, imposé par le comportement asymptotique du nombre de Reynolds, entre contraintes capillaires, inertielles et visqueuses. Plus loin de la singularité, l'analyse précédente peut être reprise avec un équilibre différent. On distingue ainsi deux régimes transitoires asymptotiques, selon que l'équilibre des forces conduit à une dynamique visco-capillaire ($\mathrm{Re} \ll 1$) ou capillaro-inertielle ($\mathrm{Re} \gg 1$).

Pour des fluides très visqueux, tels que $\mathrm{Re} \ll 1$, l'écoulement peut être décrit à partir de l'équation de Stokes. L'équilibre des contraintes capillaires et visqueuses conduit à une dynamique d'évolution du rayon linéaire en $t_0 - t$ [214], donnant pour le rayon minimum

$$R_{min}(t) = 0{,}070\,8\,\frac{\sigma}{\eta}\,(t_0 - t)\,. \tag{7.6}$$

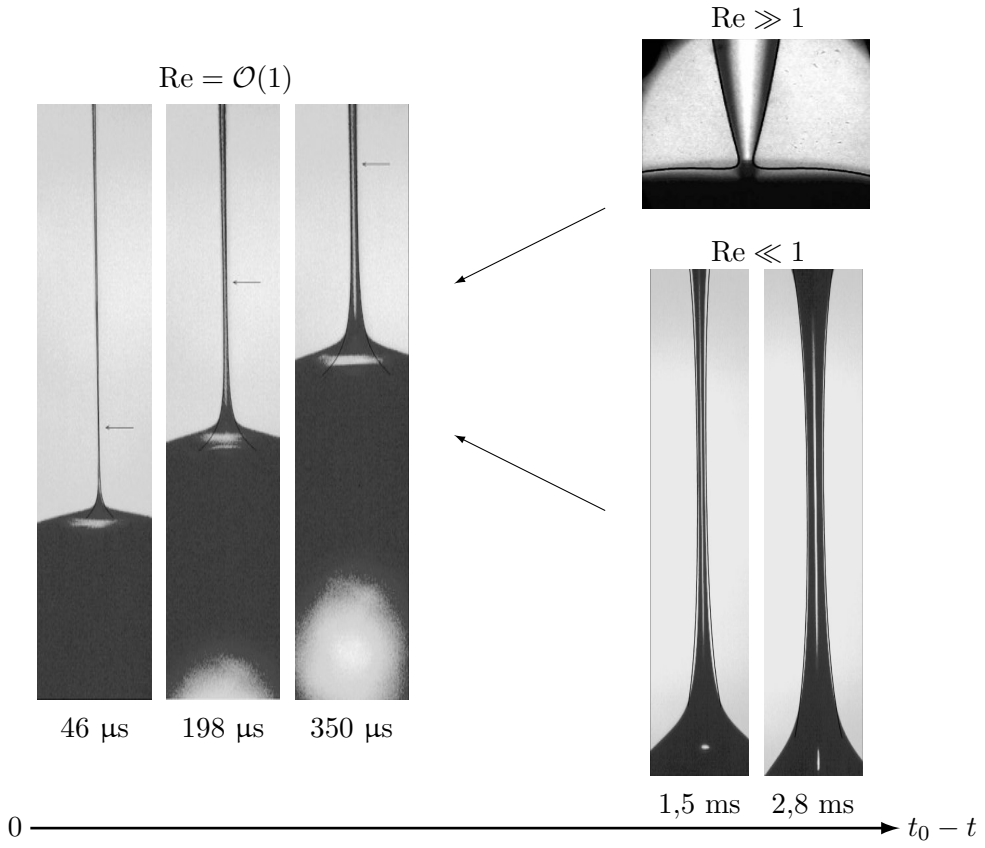

Fig. 7.4 – *Images représentatives des profils du cou à l'approche de la rupture, en l'absence de fluide externe. Les traits continus superposés aux images représentent les profils calculés avec les modèles correspondant à chaque régime. Ces observations ont été faites sur des mélanges d'eau et de glycérol (cas* $\mathrm{Re} = \mathcal{O}(1)$ *et* $\mathrm{Re} \ll 1$*), pour lesquels* ℓ_ν *est millimétrique, et sur une goutte d'eau (cas* $\mathrm{Re} \gg 1$*). Les temps indiqués correspondent au temps restant jusqu'à la rupture. Tiré de* [168] *(régimes* $\mathrm{Re} = \mathcal{O}(1)$ *et* $\mathrm{Re} \ll 1$*) et de* [217] *(régime* $\mathrm{Re} \gg 1$*).*

Dans ce régime, le profil du cou est symétrique de part et d'autre du point de rayon minimum (figure 7.4, série d'images en bas à droite). Cette symétrie est brisée lors de la transition vers le régime d'Eggers [215].

Lorsque $\mathrm{Re} \gg 1$, l'écoulement est décrit par l'équation d'Euler. La dynamique, pilotée par un équilibre capillaro-inertiel, conduit à une loi d'évolution du cou en $(t_0 - t)^{\frac{2}{3}}$ [216, 217], avec

$$R_{min}(t) = 0{,}7 \left(\frac{\sigma}{\rho}\right)^{\frac{1}{3}} (t_0 - t)^{\frac{2}{3}} . \tag{7.7}$$

Le profil du cou a une forme conique, comme le montre l'image en haut à droite de la figure 7.4, et la face arrière de la goutte présente une concavité (phénomène appelé *overturning*).

Effets du fluide externe

La présence d'un fluide externe visqueux, de viscosité $\eta_c = \mu\eta_d$, modifie la phénoménologie de la rupture d'interface. Le pincement du cou entraîne alors un écoulement du fluide externe, qui ralentit la dynamique de rupture. Lister et Stone ont notamment montré que les contraintes visqueuses liées au fluide externe croissent plus vite que les contraintes inertielles, visqueuses et capillaires évaluées dans le cadre d'un raisonnement à un fluide [218]. Ainsi, les contraintes dues au fluide externe ne peuvent être négligées, à l'approche de la rupture, que si sa viscosité est

rigoureusement nulle. Par ailleurs, le nombre de Reynolds calculé sur les lois d'échelle obtenues par un équilibre des contraintes incluant la viscosité extérieure tend vers zéro à la rupture. Un régime de Stokes à deux fluides succède donc au régime d'Eggers lorsque $R \sim \mu\ell_\nu$, à moins que l'échelle moléculaire, où les fluides ne peuvent plus être considérés comme continus, soit atteinte avant. Ce régime peut aussi être atteint directement depuis le régime visco-capillaire, sans transition par le régime d'Eggers, selon les valeurs initiales du nombre de Reynolds et du rapport des viscosités. Le profil de l'interface a une forme en double cône, asymétrique de part et d'autre du point de rayon minimum, comme représenté sur la figure 7.5 (a). Un mince filament relie la goutte au réservoir ; lors de la rupture, sa rétraction conduit à la formation d'une goutte satellite.

Du fait de l'interaction à longue portée avec le fluide externe, des corrections logarithmiques apparaissent dans l'expression des champs de vitesse, faisant disparaître l'indépendance de la dynamique vis-à-vis des conditions initiales. Cohen et coll. [219] ont cependant incorporé ces corrections dans une fonction auto-similaire $\mathcal{H}(\mu)$, qui dépend du rapport des viscosités, pour écrire la dynamique d'évolution du rayon minimum

$$R_{min}(t) = \mathcal{H}(\mu)\,\frac{\sigma}{\eta_c}\,(t_0 - t)\,. \tag{7.8}$$

Cette fonction a été calculée pour différents rapports de viscosités [220]. Les profils d'interface qui en sont déduits présentent un très bon accord avec les profils expérimentaux sur plus de trois ordres de grandeur en μ [221].

La rupture d'un fluide non visqueux entouré d'un liquide visqueux, par exemple d'une bulle de gaz dans un liquide, suit des comportements différents. Le détachement d'une bulle de gaz dans un liquide au repos conduit à la formation d'un cou symétrique. L'évolution du rayon suit une loi de puissance dont l'exposant dépend de la viscosité du fluide externe, passant de $R(t) \sim (t_0 - t)^{\frac{1}{2}}$ lorsque le liquide est peu visqueux ($\eta < 10$ mPa $\cdot$ s) à $R(t) \sim t_0 - t$ pour des viscosités plus élevées ($\eta > 100$ mPa $\cdot$ s) [222]. Dans ce cas, l'écoulement du gaz est symétrique de part et d'autre du rayon minimum et le débit de gaz à travers le cou est nul. Lorsqu'un écoulement est imposé à travers le cou, le pincement est accéléré. Un effet de succion, décrit par la loi de Bernoulli, conduit à une loi d'évolution du rayon en $(t_0 - t)^{\frac{1}{3}}$ (référence [223] et figure 7.5 (b)). Ce comportement a été récemment observé en microcanal, dans une géométrie à focalisation d'écoulement [35].

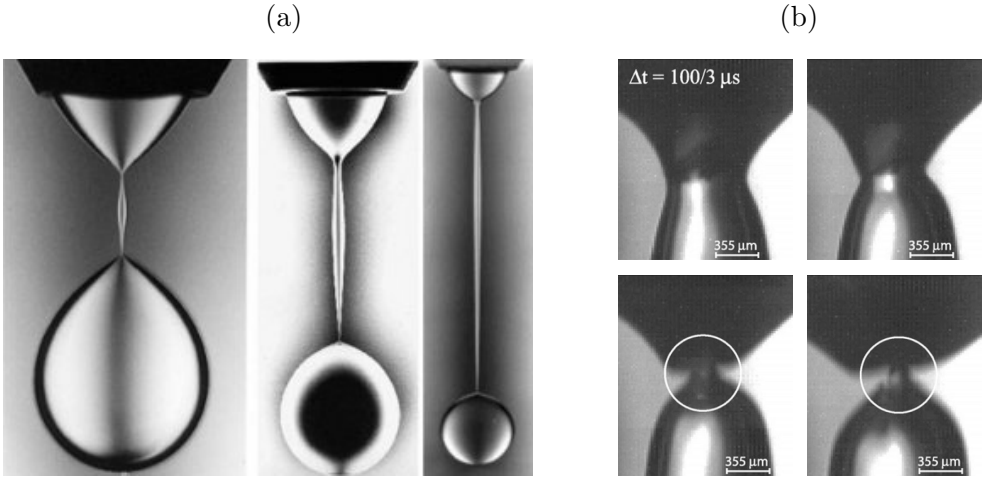

FIG. 7.5 – *Images représentatives des profils du cou à l'approche de la rupture, en présence d'un fluide externe.* (a) *Cas d'un liquide visqueux dans un autre liquide visqueux avec, de gauche à droite,* $\mu = 10, 0{,}9$ *et* 0,1. *Tiré de* [221]. (b) *Cas d'un gaz (air) dans un liquide (eau), un écoulement en régime inertiel* ($\mathrm{Re}_d \sim 10^3, \mathrm{Re}_c \sim 10^4$) *étant imposé. Tiré de* [223].

7.1.5 Déstabilisation forcée

Nous avons vu dans cette section que le caractère intrinsèquement instable d'un jet conduit à sa brisure spontanée, sous l'effet d'une perturbation aléatoire. Les gouttes formées sont alors irrégulières, comme l'avait déjà observé Savart (image de droite de la figure 7.1), et la position du point de brisure varie. De nombreuses applications, telles que l'impression par jet d'encre ou la fabrication de micro-sphères, requièrent la production de gouttes calibrées et un contrôle précis du point de brisure. Un tel contrôle peut être obtenu en excitant sélectivement un mode d'instabilité, au moyen d'une perturbation bien définie. Cela peut être réalisé, par exemple, par stimulation acoustique, à l'aide de hauts parleurs ou d'un transducteur piézo-électrique ; ou par stimulation thermique, en modifiant localement la tension de surface du fluide [224, 225].

Récemment, les méthodes de stimulation thermique basées sur une modulation spatiale de la tension de surface ont fait l'objet de nombreux travaux théoriques et expérimentaux, portés par le développement des technologies MEMS pour l'impression par jet d'encre [226]. La précision de l'impression dépend fortement du contrôle de la formation des gouttes, mais aussi de l'orientation du jet avant sa brisure. La stimulation thermocapillaire s'avère particulièrement pertinente dans ce contexte, tant du fait des possibilités offertes par la microfabrication pour la réalisation d'éléments chauffants miniaturisés que du fait de son efficacité intrinsèque à petite échelle. Les contraintes Marangoni peuvent ainsi être employées pour déstabiliser le jet de manière contrôlée [227, 228]. Lorsque la surface du jet est échauffée de façon dissymétrique, ces forces peuvent également induire la déflexion du jet [229, 230].

Un cylindre liquide est naturellement instable : une perturbation aléatoire ou imposée doit conduire à sa rupture dès qu'elle conduit à une réduction de l'énergie de surface. Cependant, le développement de cette perturbation peut être inhibé dans certaines conditions d'écoulement. Ainsi, le confinement peut stabiliser complètement le jet, tandis que l'inertie du fluide dicte la nature — convective ou absolue — de l'instabilité. Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier la réponse d'un jet confiné à une perturbation imposée.

7.2 Du pincement thermocapillaire à la rupture

Nous avons mis en évidence au chapitre 2 la déflexion d'une interface plane sous l'effet d'un gradient de tension interfaciale. Nous allons appliquer cet effet pour déformer la surface d'un jet et induire sa rupture.

7.2.1 Déformation thermocapillaire : pincement ou gonflement ?

Au chapitre 2, nous avons montré qu'un gradient de tension interfaciale induit une déflexion $h(x)$ de l'interface entre deux fluides visqueux. Le sens de la déflexion est piloté, pour un gradient de tension interfaciale donné, par un couplage entre le contraste des viscosités η_1 et η_2 et les épaisseurs H_1 et H_2 des deux couches de fluide (éq. (2.27)) :

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}x} \propto \left(\eta_1 H_2^2 - \eta_2 H_1^2\right) \frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x}, \tag{7.9}$$

la couche du bas correspondant au fluide 1. L'équivalence

$$\eta_1 H_2^2 - \eta_2 H_1^2 > 0 \quad \Leftrightarrow \quad \frac{H_1}{H_2} < \sqrt{\frac{\eta_1}{\eta_2}} \tag{7.10}$$

signifie que, pour $\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}x} > 0$, la déformation est orientée du fluide 1 vers le fluide 2 tant que le rapport des épaisseurs des deux couches est inférieur à la racine carrée du rapport des viscosités. Ce couplage entre viscosité et épaisseur provient des conditions aux limites imposées par l'existence

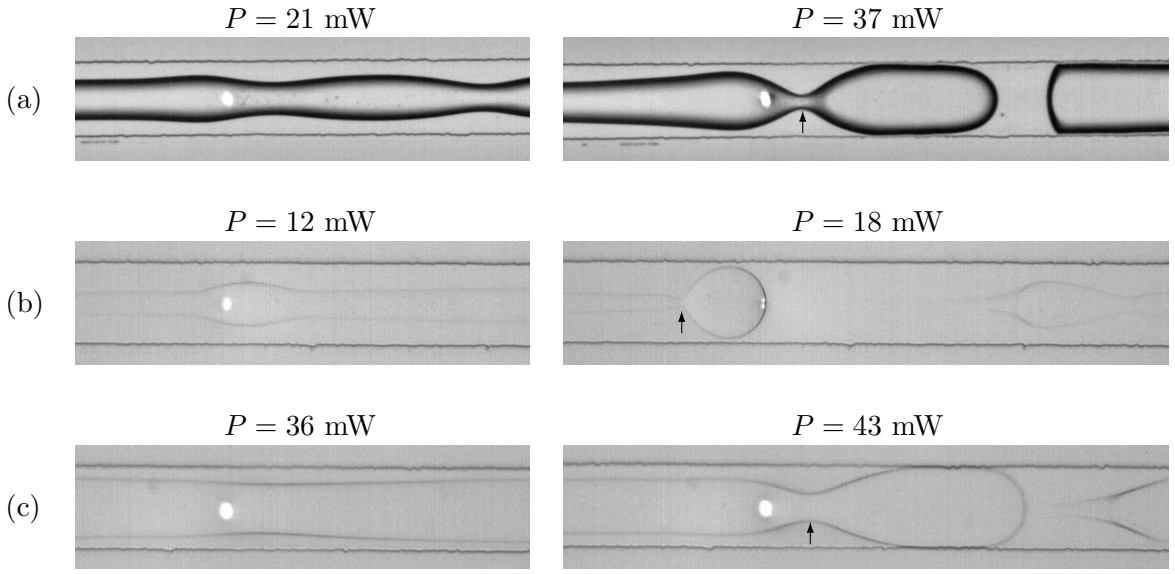

FIG. 7.6 – *Déformation thermocapillaire de jets d'eau dans l'huile pour différents contrastes de viscosité et différentes épaisseurs du jet.* (a) *Le fluide interne (eau) est le moins visqueux ;* (b, c) *le fluide interne (eau sucrée) est le plus visqueux. Les flèches sur les images de droite indiquent la position approximative du point de rupture. Débits* $(Q_d - Q_c)$ *en* $\mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$: (a) $(2-1)$, (b) $(0{,}03-0{,}2)$, (c) $(1{,}5-2)$. *Le canal a une largeur* $w \simeq 100$ µm *et une hauteur* $h \simeq 50$ µm.

de parois horizontales, de l'incompressibilité et de la continuité des vitesses à l'interface. Ainsi, bien que l'expression (2.27) soit issue d'un calcul réalisé sur une interface plane dans le cadre de l'approximation de lubrification, le comportement de la déformation en contraste de viscosité doit pouvoir être observé pour tout système diphasique incompressible et confiné.

Pour vérifier ce comportement, nous avons réalisé un écoulement parallèle entre deux phases non miscibles, en faisant varier le contraste des viscosités (figure 7.6). La phase externe est de l'hexadécane ($\eta_c \simeq 3{,}3$ mPa · s), la phase interne de l'eau ($\eta_d \simeq 1$ mPa · s) avec de l'uranine. La viscosité de l'eau peut être fortement augmentée en y ajoutant du sucre à concentration élevée. Cependant, cet ajout a également pour conséquence d'augmenter l'indice de réfraction de la phase aqueuse, comme on l'a vu au chapitre 6, supprimant totalement le contraste entre l'eau et l'huile lorsque les indices des deux phases sont identiques. À 60 % massique, concentration inférieure à la limite de solubilité du sucre à température ambiante (67 % massique), la solution obtenue a une viscosité $\eta_d = 59{,}7$ mPa · s (à 20 °C) [231], supérieure d'un ordre de grandeur à celle de l'huile. Par ailleurs, son indice de réfraction ($n = 1{,}44$) dépasse celui de l'huile (1,43), permettant de distinguer l'interface.

Des tensioactifs ont été ajoutés à chaque phase (Span® 80 dans l'huile, SDS dans l'eau) à une concentration très supérieure à la CMC. Dans ces conditions, le gradient de tension interfaciale est orienté dans le même sens que le gradient de température, comme on l'a vu précédemment.

Notons enfin que, le microcanal utilisé ayant une section rectangulaire, le confinement du jet est différent suivant les directions transverses horizontale et verticale. Les déformations observées résultent donc d'un « confinement moyen » qui ne peut simplement s'écrire comme le rapport des largeurs apparentes de chaque couche de fluide.

La figure 7.6 (a) représente la déformation obtenue dans le cas d'un jet d'eau dans l'huile. On observe un pincement du jet. L'interface est ainsi déformée, au voisinage du faisceau laser, du fluide le plus visqueux vers le fluide le moins visqueux. Un bourrelet, résultant de l'accumulation d'eau chassée de la zone pincée, peut être observé en amont de cette zone.

Le cas d'un jet d'eau sucrée dans l'huile est représenté sur la figure 7.6 (b). Le jet présente alors un renflement au niveau du faisceau laser : la déformation est donc toujours orientée vers le liquide le moins visqueux. Pour inverser le sens de la déformation, on peut modifier les épaisseurs relatives d'eau et d'huile par une modification du rapport des débits. On observe alors un pincement du jet d'eau sucrée (figure 7.6 (c)). Le comportement symétrique n'a cependant jamais été observé dans le cas où le jet est moins visqueux, faute de pouvoir réaliser un jet suffisamment fin.

Quel que soit le sens de déformation, la déformation thermocapillaire peut conduire à la brisure du jet, et ainsi être utilisée pour former des gouttes, comme le montre la série d'images de droite de la figure 7.6. Dans le cas d'un pincement, le jet rompt en un point situé un peu en aval du faisceau (figure 7.6 (a) et (c)). La rupture est directement initiée par la déformation. Lorsque la déformation thermocapillaire induit un gonflement, l'accumulation de fluide crée un bouchon. L'huile pince alors le jet en amont du bourrelet, ce qui conduit à la rupture de l'interface [23]. Après cette première brisure, le ménisque en amont de la rupture est retenu au niveau du laser par blocage thermocapillaire, et du fluide s'accumule, conduisant à une nouvelle rupture en face arrière (figure 7.6 (b)). Ce mécanisme se reproduit alors périodiquement.

On remarque par ailleurs que les gouttes d'eau sucrée sont très déformables, le cisaillement de l'interface conduisant à la formation de fines traînées [232].

Dans cette section, nous avons montré expérimentalement que la déformation thermocapillaire d'un jet résulte en un pincement ou un gonflement. L'un et l'autre peuvent conduire à sa brisure, selon deux mécanismes *a priori* différents. Dans la suite, nous considérerons le cas où le jet d'eau, moins visqueux que l'huile, est pincé.

7.2.2 Pincement thermocapillaire d'un jet

Obtention d'un jet stable

On cherche à réaliser un écoulement parallèle sous forme de jet stable, présentant une interface dont la forme est stationnaire. Les travaux de Guillot et coll. [207–211] ont montré que les régimes de jets sont favorisés à débits élevés. En particulier, des jets stables présentant une interface non oscillante — symboles carrés pleins sur la figure 7.3 (c) — sont obtenus lorsque le débit de la phase interne est élevé. Lorsque le canal a une section rectangulaire, le confinement permet également d'accroître le domaine de stabilité du jet.

Néanmoins, la perturbation que nous cherchons à imposer limite les débits accessibles. Lorsque la vitesse du jet est trop élevée, l'interface ne peut être échauffée de manière significative, et aucune déformation thermocapillaire n'est observée. Cette limitation sur les débits impose de réduire la tension interfaciale. L'huile contenant déjà du Span® 80 au-delà de sa CMC, un autre tensioactif (du SDS) est ajouté dans l'eau dans ce but.

Lorsque la concentration en Span® 80 est maintenue à sa valeur de référence (2 % massique), l'ajout de SDS au-delà de sa CMC rend l'interface très déformable. Des filaments semblables aux traînées observées sur les gouttes d'eau sucrée (figure 7.6 (b) et (c)) se forment ; leur rupture spontanée conduit à la formation de microgouttes par un mécanisme de *tip streaming*. En réduisant la concentration en Span® 80, tout en la maintenant au-delà de la CMC, on peut supprimer totalement ces traînées. Les concentrations sont donc fixées à 0,3 % massique pour le Span® 80 (soit environ 5 CMC) et 2,5 % massique (soit 10 CMC) pour le SDS.

La tension interfaciale entre l'eau et l'hexadécane avec ces deux tensioactifs n'est pas connue. Guillot estime sa valeur inférieure à 1 $\mathrm{mN \cdot m^{-1}}$ lorsque la concentration de chacun des tensioactifs est supérieure à la CMC dans chaque phase [210]. D'autre part, la référence [232] présente les caractéristiques d'écoulements d'eau dans l'huile, en présence de fortes concentrations de Span® 80 dans l'huile et de Tween® 20 (polysorbate 20) dans l'eau. Les gouttes sont très déformables et présentent des traînées, semblables à celles que nous avons observées. Bien que

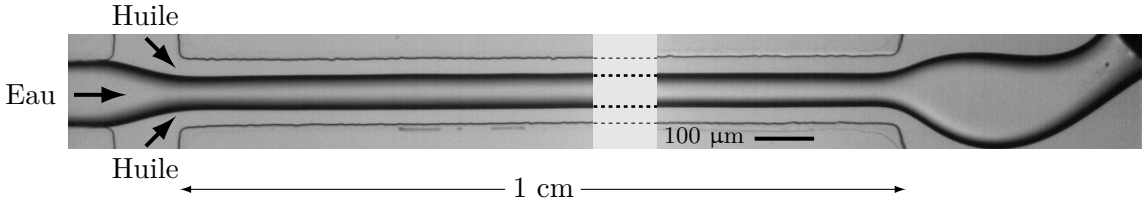

FIG. 7.7 – *Configuration expérimentale, correspondant à un écoulement parallèle d'eau et d'huile. Le jet d'eau est stable sur toute la longueur du microcanal. La largeur des canaux est* $w \simeq 100$ µm*, la hauteur* $h \simeq 50$ µm*.*

n'ayant pas pu mesurer directement la tension interfaciale, les auteurs l'estiment de l'ordre de 0,01 $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$. Pour des concentrations en tensioactifs moins élevées mais encore supérieures à la CMC, les tensions interfaciales mesurées sont comprises entre 0,2 et 0,7 $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$. L'interface ne forme alors pas de filament, à l'instar de ce que nous observons dans nos conditions de concentrations. La tension interfaciale dans notre cas peut donc être supposée dans le même ordre de grandeur.

La figure 7.7 représente l'écoulement obtenu, pour des débits d'eau et d'huile fixés à 3 et 1,5 $\mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ respectivement. L'eau s'écoule sous la forme d'un jet continu, stable sur toute la longueur du canal. La continuité de l'écoulement est conservée jusqu'à l'évacuation, visible au coin supérieur droit de la figure. Dans la zone d'intérêt, la largeur apparente du jet est de 60 µm, un peu plus grande que la hauteur du canal. Cette observation suggère que le jet a une section quasi-circulaire — on définit donc son rayon comme la moitié de sa largeur apparente en un point donné [1] —, et que sa stabilité est assurée par le confinement.

Déformation et déstabilisation du jet

Le laser est positionné suffisamment loin de la croix pour que les lignes de courant soient toutes parallèles. Lors de l'allumage du laser, on observe généralement une réponse transitoire du jet. Par exemple, le jet peut se briser sur toute sa longueur, formant des gouttes irrégulières, puis se reformer au bout de quelques secondes. La réponse du jet suit ensuite un régime « stationnaire », durant lequel les comportements observés ne varient pas qualitativement sur des échelles de temps de l'ordre de la minute. Le caractère stationnaire de ce régime sera toutefois discuté plus loin (section 7.3.1).

La figure 7.8 présente les déformations observées dans ce régime. Le faisceau laser pince le jet pendant une durée de l'ordre de 20 ms. À puissance modérée, $P = 21$ mW dans ce cas (série d'images du haut), ce pincement initié au niveau du faisceau laser se propage vers l'aval, porté par l'écoulement. Un nouveau pincement se produit environ 60 ms plus tard. L'interface présente ainsi des ondulations régulières — on peut définir une longueur d'onde comme la distance entre deux points de rayon minimum successifs — en aval du faisceau laser. Ces ondulations s'atténuent au cours de l'écoulement, de sorte qu'au-delà d'une distance de l'ordre de quelques longueurs d'onde le jet retrouve son rayon non perturbé. Le jet ne rompt donc pas.

Les ondulations observées correspondent aux modes excités par la perturbation imposée. L'atténuation de ces ondulations signifie que ces modes ont un taux de croissance négatif, confirmant la stabilité du jet vis-à-vis de cette perturbation.

À une puissance plus élevée, $P = 37$ mW sur la série d'images du bas, le pincement conduit à la rupture du jet, en un point localisé un peu en aval — à moins d'une longueur d'onde — du faisceau laser. Des gouttes sont alors émises périodiquement, toutes les 40 ms environ. Leur taille est comparable à la longueur d'onde des oscillations.

1. Cette définition est cependant abusive dès lors que le jet s'écarte fortement de la géométrie cylindrique, ce qui peut être le cas localement sous l'effet d'une déformation d'interface de grande amplitude.

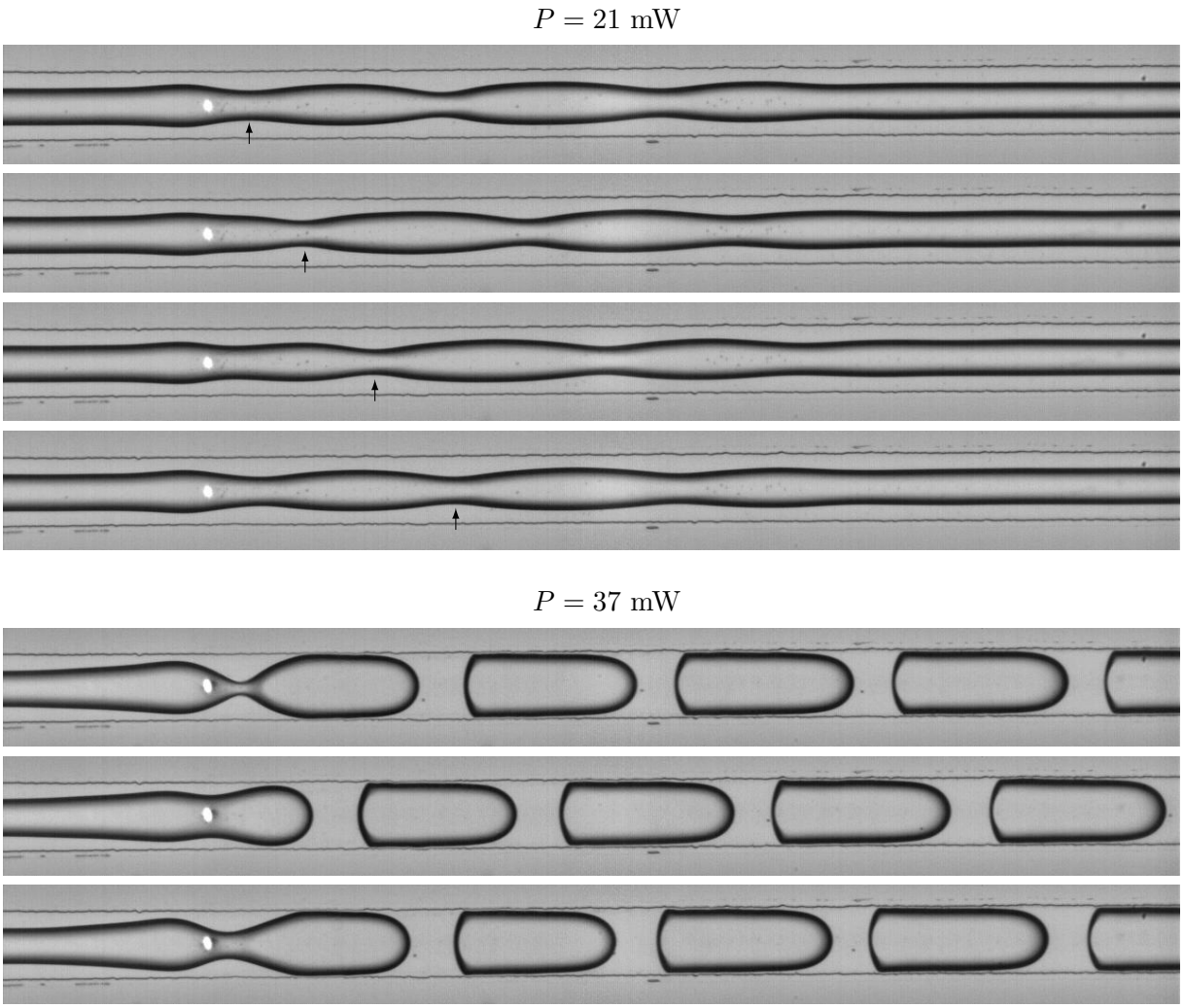

Fig. 7.8 – *Successions d'images illustrant le pincement thermocapillaire d'un jet. À puissance modérée* ($P = 21$ mW) *la déformation crée des ondulations qui s'atténuent au cours de l'écoulement. Les flèches illustrent l'advection du point de pincement initié à la première image. À plus grande puissance* (37 mW) *la déformation conduit à la rupture périodique du jet en gouttes régulières. L'incrément temporel entre deux images successives est* 20 ms. *Débits :* $Q_d = 2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ *et* $Q_c = 1\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ *; rayon au col :* $\omega_0 = 5{,}52\ \mu\text{m}$.

Le fait que le pincement thermocapillaire ne conduise à la brisure du jet qu'au-delà d'une puissance seuil suggère l'existence de deux mécanismes distincts. Pour caractériser ces mécanismes, on étudie la dynamique temporelle de la déformation.

Dynamique de pincement

L'étude de la dynamique du pincement suppose de définir des conditions initiales. Comme on l'a vu précédemment, la réponse transitoire du jet lors de l'allumage du laser ne correspond pas aux comportements réguliers observés aux temps plus longs.

Lorsque la puissance laser est modulée temporellement, on observe d'abord un transitoire, puis un régime régulier, comme dans le cas de l'excitation continue présentée ci-dessus. On cherche à caractériser ce régime. Le laser est donc modulé, à l'aide d'un modulateur mécanique placé dans le faisceau en amont du microscope (figure 3.3). On obtient un créneau d'intensité, dont la fréquence est contrôlée par la vitesse de rotation du modulateur. La fréquence de modulation, 30 Hz, est choisie telle que la durée du créneau (une demi-période de modulation) soit supérieure à la durée d'un pincement.

L'image de l'écoulement est réalisée avec un objectif de grandissement $\times 20$, et la cadence d'acquisition de la caméra est fixée à 3 000 images par seconde. Le temps d'exposition pour chaque image est 110 µs. La cadence d'acquisition est limitée, d'une part, par le niveau d'éclairage, d'autre part, par la surface sensible de la caméra, qui diminue fortement aux hautes cadences. Les séquences enregistrées, qui comportent 1 000 images, correspondent donc à 10 périodes de modulation.

La figure 7.9 présente des séquences d'images prises à différentes puissances pour un couple de débits donné. À basse puissance ($P = 31$ mW, série d'images du haut), le rayon initial du jet est proche de sa valeur en l'absence de perturbation, contrairement au cas à forte puissance ($P = 61$ mW, série d'images du bas). Comme on l'a vu précédemment (figure 7.8), le pincement thermocapillaire est initié au niveau du faisceau laser, et advecté par l'écoulement. Son amplitude augmente pendant la durée du créneau, puis il se propage en s'atténuant. On remarque par ailleurs que la vitesse d'advection du point de pincement est plus grande lorsque le jet n'est plus forcé. L'interface est donc ralentie durant le pincement thermocapillaire.

À forte puissance ($P = 61$ mW, série d'images du bas), chaque pincement conduit à la brisure du jet. La géométrie du jet au début du pincement est donc très différente de celle correspondant au cas précédent : le jet a ici une longueur bornée, et il occupe une grande partie de la section du canal. La déformation se produit au niveau du faisceau laser, et conduit rapidement à la rupture, sans qu'une advection significative du point de pincement soit observée.

La série d'images du milieu représente la dynamique observée à une puissance intermédiaire (43 mW), où la brisure du jet n'est pas systématique. Au début de la déformation, la position du point de pincement se déplace lentement vers l'aval, comme observé à puissance plus faible. On remarque ensuite (4^{e} image) que le point de rayon minimum s'éloigne rapidement du faisceau. D'autre part, sur cette même image, on observe une modification locale du contraste sur l'axe de l'écoulement, ce qui traduit l'existence d'une courbure verticale. Le jet devient donc localement tridimensionnel. La brisure intervient peu après, nettement en aval du faisceau laser, alors qu'un nouveau pincement est initié. L'amplitude de cette seconde déformation n'est cependant pas suffisante pour conduire à une nouvelle brisure du jet.

Contrairement aux deux cas précédents, la dynamique n'est pas parfaitement reproductible d'une période à l'autre. En particulier, la position du point de brisure n'est pas toujours la même. Le fait que la brisure observée se produise alors qu'une seconde déformation, distincte, croît, confirme que la brisure résulte d'un mécanisme dont le pincement initial ne constitue que l'amorce. La brisure doit donc suivre une dynamique indépendante de celle du pincement thermocapillaire.

Pour une caractérisation quantitative de la dynamique du pincement, le rayon minimum du jet est mesuré image par image sur chaque séquence vidéo. Lorsque la reproductibilité de la dynamique le permet, les mesures correspondant aux périodes successives sont superposées et moyennées. Ces mesures sont répétées à différentes puissances laser, et pour plusieurs couples de débits. Les débits d'eau et d'huile sont choisis tels que le jet est stable en l'absence de perturbation imposée.

Sur la figure 7.10 sont ainsi représentées les courbes d'évolution du rayon minimum correspondant aux trois séries d'images de la figure 7.9. Les courbes correspondant aux puissances extrêmes (31 et 61 mW) sont issues des données moyennées, celle correspondant au cas intermédiaire (34 mW) représente les points sur une période de modulation. L'allure générale de la dynamique durant la demi-période où le jet est illuminé (symboles pleins) est la suivante : initialement lent, le pincement s'accélère, puis ralentit suivant une saturation d'allure exponentielle.

En l'absence de brisure ($P = 31$ mW), on observe que le pincement continue à s'amplifier légèrement, pendant environ 5 ms, après la fin de l'excitation. Le rayon du jet atteint une valeur minimale de 18 µm, inférieure à la demi-hauteur du microcanal, ce qui laisse supposer que

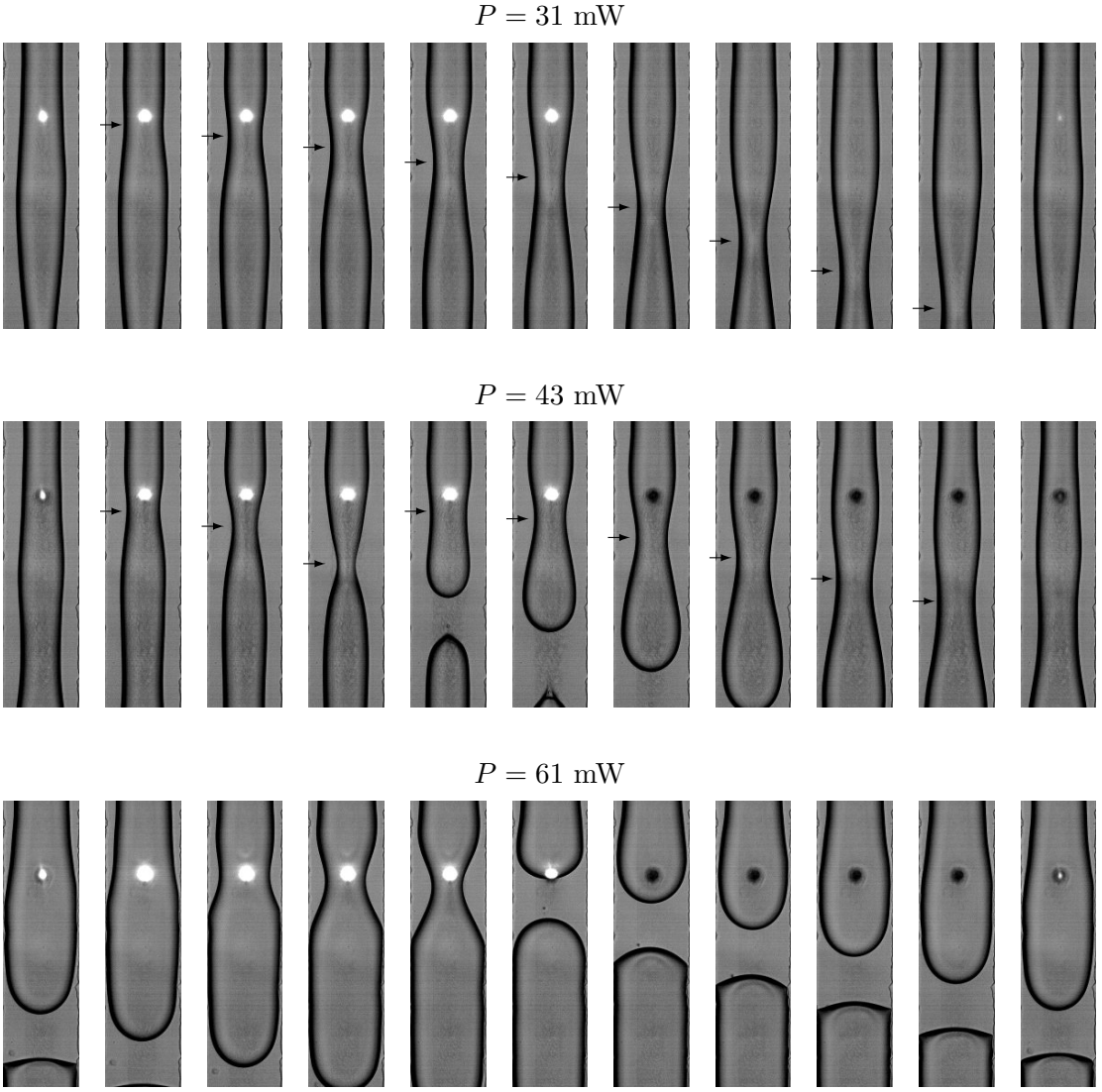

Fig. 7.9 – *Successions d'images représentant la dynamique du pincement sur une période de modulation, à différentes puissances (avec* $\omega_0 = 1{,}3$ µm*). Les flèches indiquent la position du point de rayon minimum. L'intervalle de temps entre deux images successives est* 3,33 ms*. La largeur d'une image correspond à la largeur du canal ; l'écoulement est représenté de haut en bas. Les débits sont fixés à* $Q_d = 3\ \mu\mathrm{L} \cdot \mathrm{min}^{-1}$ *et* $Q_c = 1{,}5\ \mu\mathrm{L} \cdot \mathrm{min}^{-1}$.

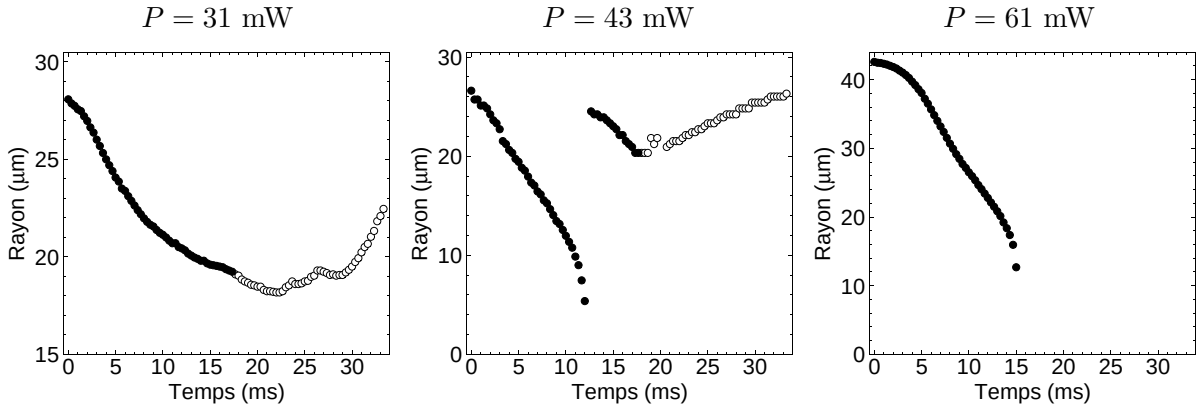

Fig. 7.10 – *Évolution du rayon minimum du jet dans les trois cas de la figure* 7.9*. Les symboles pleins correspondent à la demi-période pendant laquelle le jet est exposé au faisceau laser, les symboles ouverts à la demi-période complémentaire.*

le jet devient localement tridimensionnel. Les images, sur lesquelles aucun effet de courbure verticale n'est visible sur l'axe de l'écoulement, ne vont cependant pas dans ce sens. Après cette amplification, la déformation relaxe rapidement. Le jet n'a donc pas atteint un régime d'instabilité.

Dans les cas où le jet se rompt ($P = 43$ mW et $P = 61$ mW), on observe une seconde accélération de la dynamique, conduisant à la rupture. Cette accélération constitue une signature supplémentaire de l'existence de deux mécanismes distincts. Après la brisure, dans le cas correspondant à la puissance intermédiaire, on observe par ailleurs le second pincement thermocapillaire. Celui-ci relaxe immédiatement après la fin de l'excitation.

7.2.3 Dynamique thermique

La première étape de la déformation se produit suivant un temps caractéristique de l'ordre de quelques ms. Ce temps est comparable au temps caractéristique de diffusion thermique évalué à la section 4.2.2 (éq. (4.8)). La distribution de température ne peut donc être considérée comme stationnaire. De plus, on s'intéresse à la déformation en un point mobile par rapport au faisceau laser : ce déplacement doit également être pris en compte.

L'élévation de température d'un milieu absorbant induite par un faisceau laser mobile a été étudiée à partir de la seconde moitié des années 1970. Ces travaux théoriques ont été motivés par le développement d'applications des lasers aux traitements de surface ou aux procédés de soudage. L'équation de la chaleur en présence d'une source mobile de forme gaussienne est généralement résolue à l'aide des fonctions de Green. De nombreuses références en proposent ainsi des solutions particulières adaptées à une problématique donnée, par exemple dans l'approximation d'un milieu opaque absorbant en surface, d'extension semi-infinie [233] ou présentant une structure multicouches [234]. Sanders a proposé une solution générale dépendant du temps, dans le cas d'un milieu semi-infini [235]. L'effet de taille finie a été discuté par Manca et coll., mais dans le cadre d'une solution quasi-stationnaire, qui ne décrit pas la dynamique d'évolution de la température [236].

Nous reprenons ici la solution dynamique de Sanders. L'équation de la chaleur est considérée sous forme purement diffusive,

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_T \nabla^2 T + \frac{D_T}{\Lambda} \alpha I(x, y, z, t), \tag{7.11}$$

avec un terme source gaussien balayant, à la vitesse u et suivant la direction x, un milieu solide absorbant d'extension semi-infinie,

$$I(x, y, z, t) = \frac{2P}{\pi \omega_0^2} \exp\left(-2 \, \frac{x^2(t) + y^2}{\omega_0^2} - \alpha z \right). \tag{7.12}$$

L'axe optique est orienté suivant z, avec le solide en $z \geqslant 0$, selon la géométrie représentée sur la figure 7.11.

L'élévation de température en un point (x, y, z, t) sous l'effet d'un échauffement localisé en un point (x', y', z', t') s'écrit

$$\mathrm{d}T(x, y, z, t) = \frac{D_T \alpha I(x', y', z', t')}{8\Lambda \left(\pi D_T \left(t - t'\right)\right)^{\frac{3}{2}}} \exp\left(-\frac{(x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2}{4 D_T \left(t - t'\right)} \right) \mathrm{d}x' \mathrm{d}y' \mathrm{d}z' \mathrm{d}t'. \tag{7.13}$$

Les variables d'espace et de temps sont adimensionnées

$$\hat{x} = \frac{\sqrt{2}}{\omega_0} x, \qquad \hat{y} = \frac{\sqrt{2}}{\omega_0} y, \qquad \hat{z} = \alpha z, \qquad \hat{t} = \frac{8 D_T}{\omega_0^2} t, \tag{7.14}$$

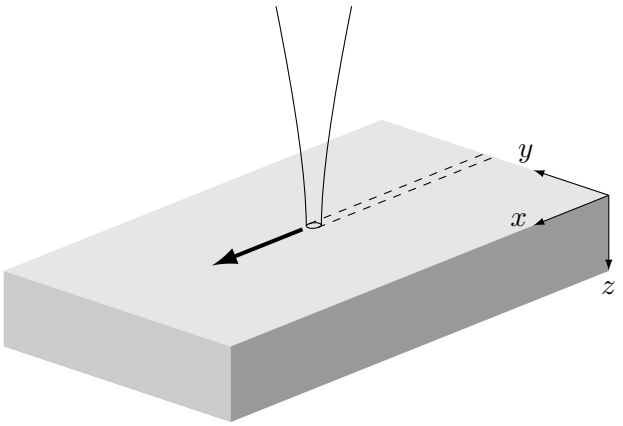

Fig. 7.11 – *Géométrie considérée dans le calcul de Sanders* [235]. *Le milieu absorbant est semi-infini.*

et on pose

$$\hat{v} = \frac{\omega_0 u}{4\sqrt{2}D_T} \qquad \text{et} \qquad \zeta = \frac{\alpha\omega_0}{2\sqrt{2}}. \tag{7.15}$$

Ces deux termes définissent respectivement la vitesse de balayage adimensionnée, et un paramètre géométrique pouvant être vu comme un « rapport d'aspect » de la distribution d'intensité au sein du milieu absorbant. La température peut s'écrire

$$T(x,y,z,t) = \frac{P}{\sqrt{2\pi}\Lambda\omega_0}\hat{T}\left(\hat{x},\hat{y},\hat{z},\hat{t};\hat{v},\zeta\right), \tag{7.16}$$

faisant apparaître la température adimensionnée $\hat{T}$.

La solution générale proposée par Sanders est alors, à tout instant t inclus dans la durée du créneau,

$$\begin{aligned}\hat{T}\left(\hat{x},\hat{y},\hat{z},\hat{t};\hat{v},\zeta\right) = \frac{\zeta}{2\sqrt{\pi}}\int_0^{\hat{t}} \frac{\exp\left(\zeta^2\hat{t}'\right)}{\hat{t}'+1}\,\exp\left(-\frac{\left(\hat{x}-\hat{v}\left(\hat{t}-\hat{t}'\right)\right)^2+\hat{y}^2}{\hat{t}'+1}\right) \\ \times\left(\mathrm{e}^{\hat{z}}\,\mathrm{erfc}\left(\zeta\sqrt{\hat{t}'}+\frac{\hat{z}}{2}\zeta\sqrt{\hat{t}'}\right)+\mathrm{e}^{-\hat{z}}\,\mathrm{erfc}\left(\zeta\sqrt{\hat{t}'}-\frac{\hat{z}}{2}\zeta\sqrt{\hat{t}'}\right)\right)\mathrm{d}\hat{t}'\end{aligned} \tag{7.17}$$

avec $\mathrm{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_x^\infty \mathrm{e}^{-t^2}\mathrm{d}t$ la fonction erreur complémentaire.

Nous considérons un faisceau laser immobile, dont les coordonnées sont fixées arbitrairement à $(x'=0, y'=0, z', t')$. On cherche à évaluer la température en un point (x,y,z,t) de l'interface du jet se déplaçant à la vitesse $-u$ par rapport au faisceau laser. Dans une approche purement diffusive, on peut considérer de façon équivalente que ce point est fixe — à la position arbitraire $x=0$ — et balayé par le faisceau laser à la vitesse u. Compte tenu de la valeur de l'absorption du milieu, et de l'épaisseur du microcanal, on a $\hat{z} \leqslant 0{,}09 \ll 1$. On peut donc considérer la solution en $\hat{z} \simeq 0$:

$$\hat{T}\left(0,\hat{y},0,\hat{t};\hat{v},\zeta\right) = \frac{\zeta}{\sqrt{\pi}}\int_0^{\hat{t}} \frac{\exp\left(\zeta^2\hat{t}'\right)}{\hat{t}'+1}\,\exp\left(-\frac{\hat{v}^2\left(\hat{t}-\hat{t}'\right)^2+\hat{y}^2}{\hat{t}'+1}\right)\mathrm{erfc}\left(\zeta\sqrt{\hat{t}'}\right)\mathrm{d}\hat{t}'. \tag{7.18}$$

Le cas que nous considérons n'est cependant pas symétrique de celui traité par Sanders. Dans notre cas, le faisceau laser est immobile, et on considère l'échauffement d'un liquide s'écoulant à une vitesse donnée. Le transfert thermique résulte donc des mécanismes conjoints d'advection et de diffusion. Avec une vitesse d'écoulement de l'ordre du $\mathrm{cm}\cdot\mathrm{s}^{-1}$, le nombre de Péclet thermique (éq. (4.7)) est de l'ordre de l'unité. Ainsi, si l'écriture de l'équation de la chaleur diffusive

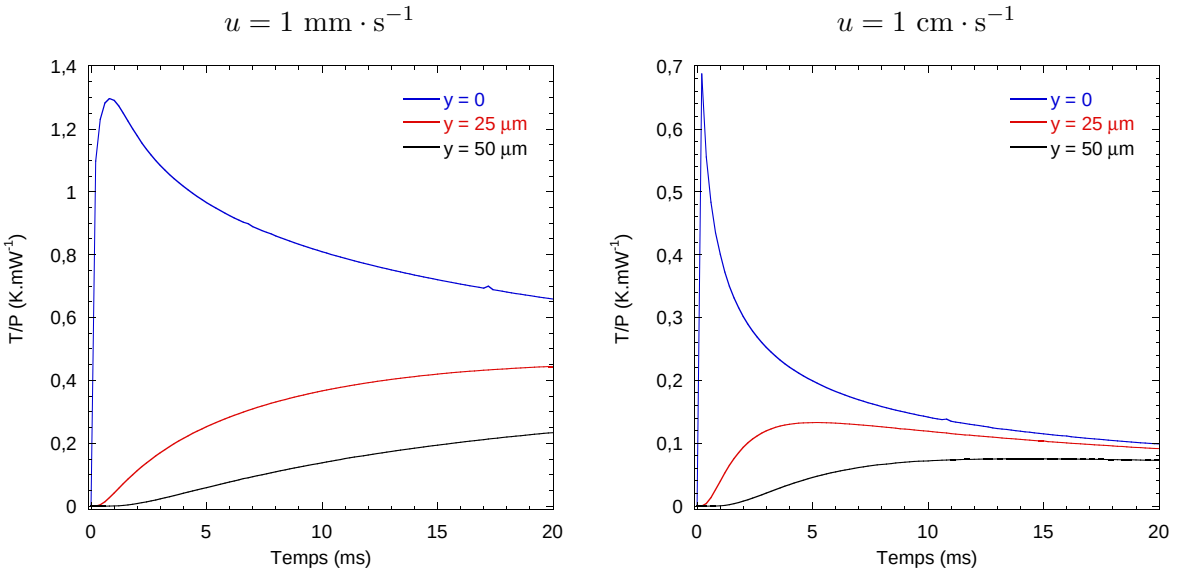

FIG. 7.12 – *Dynamique d'élévation de température évaluée d'après* (7.18) *pour deux vitesses de balayage* (1 mm · s^{-1} *et* 1 cm · s^{-1})*, avec les propriétés thermiques de la solution d'uranine et* $\omega_0 = 1{,}4$ µm.

est parfaitement justifiée dans le cas du chauffage d'un solide, elle est plus approximative dans notre cas. Par ailleurs, Sanders ignore tout transfert de chaleur entre le milieu échauffé et son environnement (du vide). Dans le cas du jet, de tels transferts existent, entre l'eau et la paroi de verre, séparées d'un film d'hexadécane. L'influence de ces transferts sur la dynamique thermique est discutée dans l'annexe C (section C.3).

L'intégrale (7.18) est calculée numériquement. La figure 7.12 présente l'allure de la dynamique thermique obtenue pour différentes vitesses de balayage, à différentes distances y de l'axe de balayage, confondu avec l'axe du jet. Les valeurs de y comprises entre 25 et 50 µm correspondent à des distances réalistes entre un point considéré sur l'interface et l'axe du jet. L'élévation de température sur l'axe $y = 0$ atteint des valeurs instantanées de l'ordre du K · mW^{-1}. Cet ordre de grandeur est confirmé expérimentalement par la nucléation de bulles, au niveau du spot laser, à des puissances voisines de 90 mW.

La dynamique calculée dépend fortement de la vitesse de balayage, et de la distance y. L'allure de la dynamique thermique semble, pour des valeurs de u et de y correspondant à celles du point de pincement observé, compatible avec la dynamique de déformation thermocapillaire.

Comme la déformation thermocapillaire dépend de l'élévation de température, on peut tenter un ajustement du rayon minimum du jet à partir de ce calcul, sous la forme

$$R_{min}(t) = R_0 - h_{th}\left(T(t)\right), \tag{7.19}$$

avec R_0 le rayon initial et h_{th} l'amplitude de déformation thermocapillaire, fonction de la température $T(t)$ calculée à partir de (7.18). Le terme reliant l'amplitude de déformation à la température adimensionnée, indépendant du temps, est laissé en paramètre ajustable. La valeur de y intervenant dans (7.18) est alors fixée comme le rayon minimum instantané du jet, $R_{min}(t)$, et sa vitesse u est évaluée à partir de la position instantanée du point de pincement, également mesurée.

La dynamique d'évolution du rayon ne peut être correctement décrite, dans tous les cas considérés, avec la constante de temps $\frac{\omega_0^2}{8D_T}$ suggérée par l'adimensionnement (7.14). Un accord satisfaisant est obtenu en imposant une constante de temps 1,8 fois plus grande, ce qui est très proche de la valeur suggérée compte tenu de la simplicité du modèle thermique considéré.

Les données représentées sur la figure 7.10 sont ainsi reproduites sur la figure 7.13, pour la demi-période où le jet est illuminé. La ligne continue est l'ajustement obtenu avec (7.19). La

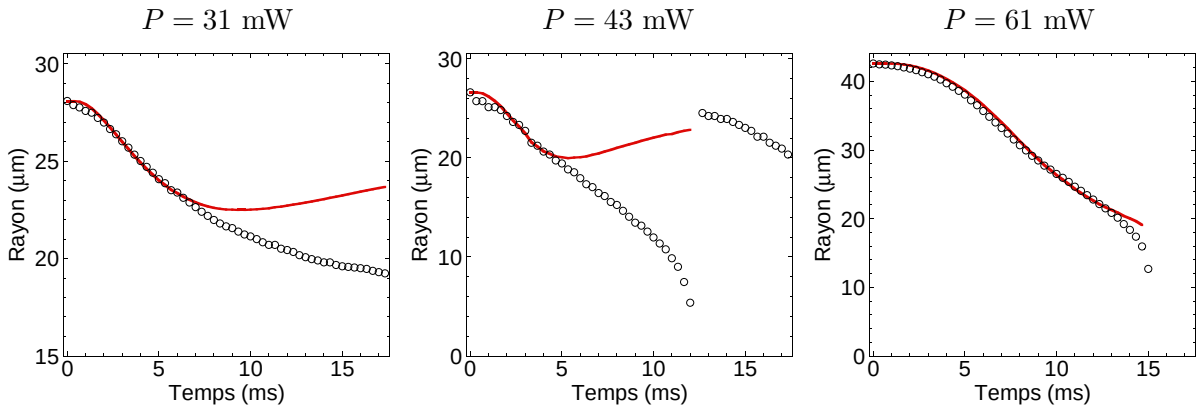

Fig. 7.13 – *Dynamique de déformation thermocapillaire : les données de la figure* 7.10 *correspondant à la demi-période pendant laquelle le jet est exposé au faisceau laser sont ajustées à partir de* (7.19).

dynamique calculée décrit très bien la dynamique de déformation aux temps courts. Après un temps de l'ordre de 5 ms — davantage si le jet est initialement plus large —, la dynamique thermique prédit une atténuation de la déformation, alors que la déformation mesurée continue à s'amplifier. Dans les cas où le jet se brise (ici, à $P = 43$ mW et à $P = 61$ mW), cette amplification peut être due au fait que le jet est devenu instable, l'instabilité amplifiant alors toute perturbation jusqu'à la rupture du jet. Cette explication n'est cependant pas valable lorsque le jet reste stable, par exemple à $P = 31$ mW. Dans ce cas, on observe en outre (courbe de gauche de la figure 7.10) que la déformation se poursuit sur le même rythme quelques ms après la fin du chauffage. Cette dernière observation suggère que le désaccord résulte probablement d'une composante inertielle qui a été ignorée dans le calcul, qui suppose $\mathrm{Pé}_T \ll 1$.

Le terme d'amplitude de déformation thermocapillaire issu de l'ajustement des dynamiques de pincement dans les différentes conditions expérimentales considérées est représenté sur la figure 7.14. Il varie linéairement avec la puissance laser, et est indépendant des débits.

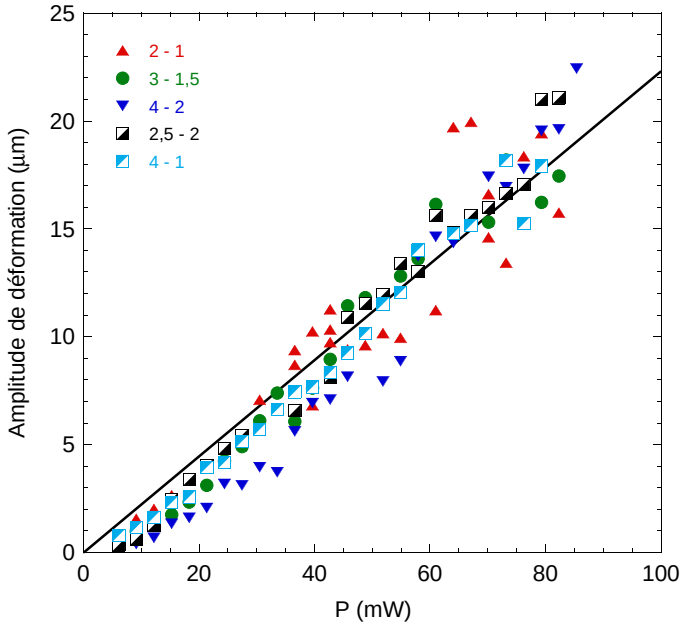

Fig. 7.14 – *Terme d'amplitude de la déformation thermocapillaire issu de l'ajustement* (7.19) *des dynamiques de pincement à plusieurs couples de débits. Les valeurs indiquées en légende sont respectivement* Q_d *et* Q_c *en* $\mu\mathrm{L} \cdot \mathrm{min}^{-1}$.

Dans cette section, nous avons montré que le pincement du jet est initié par un mécanisme de déformation thermocapillaire, que nous avons caractérisé. Son amplitude ne dépend que de la puissance laser, les propriétés des fluides étant fixées. La rupture du jet ne peut cependant s'expliquer à partir de cette seule déformation thermocapillaire.

7.2.4 Dynamique proche de la rupture

Nous avons vu à la section 7.1.4 que la dynamique d'évolution du jet à l'approche de la rupture suit des lois universelles, indépendantes des conditions initiales. Nous avons également montré à la section précédente que le pincement thermocapillaire suit une dynamique qui dépend fortement de la géométrie initiale du jet. Peut-on, après cette première étape de déformation, retrouver une dynamique universelle ?

Faciès de rupture

La figure 7.15 est une succession d'images correspondant aux ultimes instants précédant la rupture dans les deux cas présentés sur la figure 7.9. Ces deux cas, correspondant à deux puissances laser différentes, présentent deux faciès apparemment distincts.

À 43 mW (série d'images du haut), le jet n'occupe pas toute la section du canal de part et d'autre du point de rayon minimum. Le pincement s'amplifie, comme on l'a déjà noté, en aval du faisceau laser. Le profil du cou est symétrique de part et d'autre du point de pincement, mais change de forme à l'approche de la rupture. De plus, la courbure verticale est asymétrique : la différence de contraste sur l'axe de l'écoulement suggère une courbure plus marquée en aval qu'en amont du cou. Sur l'avant-dernière image, celle précédant la rupture, on observe qu'un filament se forme, et que le cou adopte une forme biconique asymétrique. Ce profil est analogue à celui observé pour un régime à deux fluides visqueux (figure 7.5 (b)). Une petite goutte satellite

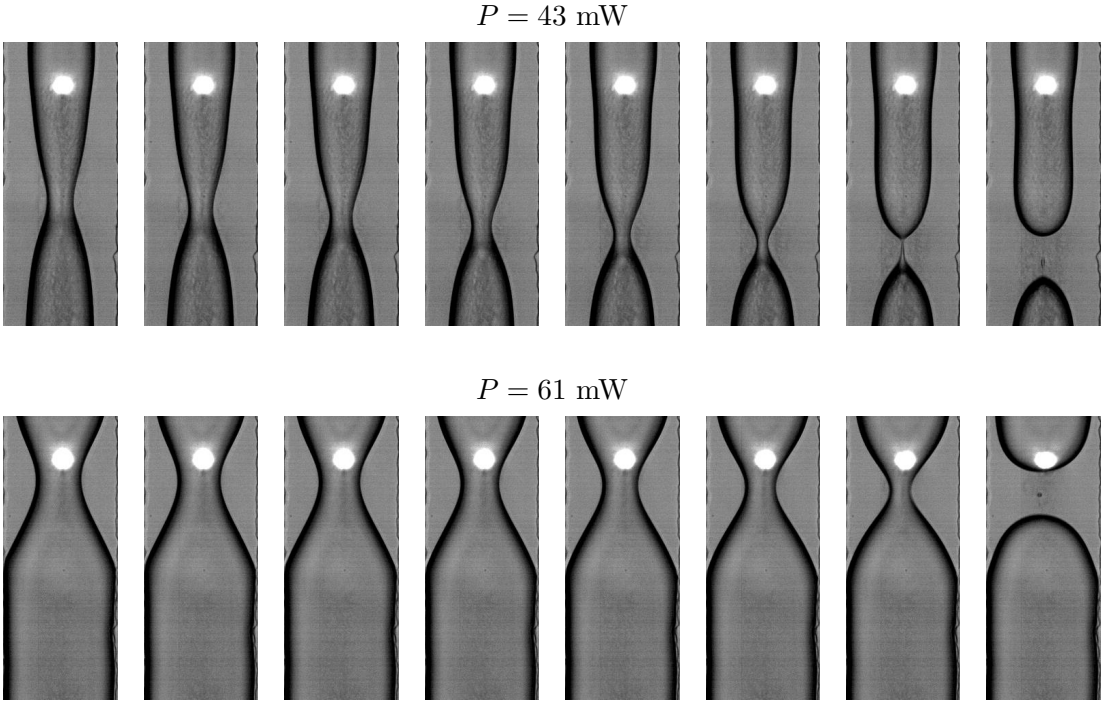

FIG. 7.15 – *Successions d'images représentant la dynamique du pincement peu avant la rupture. Ces images correspondent aux deux cas de brisure illustrés sur la figure* 7.9*. L'intervalle de temps entre deux images successives est* 0,33 ms*. La largeur d'une image correspond à la largeur du canal ; l'écoulement est représenté de haut en bas.*

est produite lors de la rétraction du filament.

À 61 mW (série d'images du bas), le jet occupe la majeure partie de la section du canal, en amont comme en aval du point de pincement. Le pincement reste localisé près du faisceau laser, ce qui suggère que la vitesse de l'huile autour du cou est très faible. Le profil du cou est symétrique de part et d'autre du point de pincement, et semble le rester jusqu'à la rupture. La dynamique du pincement est cependant plus rapide que dans le cas précédent, et la résolution temporelle ne permet pas de saisir le profil du cou aux derniers instants. Un satellite est néanmoins systématiquement observé, laissant supposer l'existence d'un filament comme dans le cas précédent.

Nous observons donc, sur ces deux exemples, deux dynamiques *a priori* distinctes. Ceci suggère que la dynamique de rupture dépend des conditions dans lesquelles l'étape de déformation thermocapillaire a initié l'instabilité. Une analyse quantitative de cette dynamique est cependant nécessaire.

Évolution du rayon minimum

Les courbes d'évolution du rayon minimum sont représentées en fonction du temps restant jusqu'à la rupture, $t_0 - t$, sur la figure 7.16 (a). Chacun des graphes constituant cette figure correspond à un des couples de débits où la brisure du jet est observée ; les données correspondant à différentes puissances laser, à couple de débits donné, sont regroupées sur un même graphe. On observe que toutes les courbes pour lesquelles le rayon du jet au début de la déformation est grand, suggérant un fort confinement initial, se rejoignent. Ces courbes, qui correspondent en général aux puissances laser les plus élevées, décrivent ainsi un comportement commun à l'approche de la rupture. Les courbes correspondant aux puissances plus faibles, associées à un moindre confinement initial, suivent une dynamique distincte. Cette dynamique est, en règle générale, d'autant plus proche du comportement commun que le rayon initial du jet est grand. Aux derniers instants, les courbes les plus proches semblent rejoindre le comportement commun. Une meilleure résolution temporelle est cependant nécessaire pour le confirmer.

La dynamique d'évolution du rayon minimum à l'approche de la rupture suit, comme on l'a vu à la section 7.1.4, une loi de puissance du temps jusqu'à la singularité. Le comportement commun est ainsi bien décrit par une loi de puissance dont l'exposant est très proche de $\frac{1}{3}$, quel que soit le couple de débits considéré. La valeur du préfacteur est comprise entre 15 et 17 $\mu\mathrm{m} \cdot \mathrm{ms}^{-\frac{1}{3}}$.

Les courbes d'évolution du rayon minimum sont également tracées en échelle logarithmique sur la figure 7.16 (b). Près de la rupture, elles suivent toutes une loi de puissance similaire, dont l'exposant est manifestement proche de $\frac{1}{3}$. On retrouve par ailleurs le comportement commun déjà évoqué pour les courbes correspondant aux grandes puissances.

L'exposant associé à chaque courbe est déterminé individuellement. La figure 7.16 (c) représente la distribution des exposants ainsi obtenus pour toutes les dynamiques. Cette distribution peut être ajustée par une gaussienne, centrée autour de 0,32 et de demi-largeur à e^{-1} égale à 0,09. Cette valeur de l'exposant confirme celle qui correspond au comportement commun. D'autre part, une étude avec une meilleure résolution temporelle permettrait d'affiner la distribution.

La dynamique de rupture observée est donc compatible avec une loi de puissance d'exposant $\frac{1}{3}$. Cette valeur de l'exposant est inattendue. Dans la littérature, une dynamique aussi rapide est associée à un effet de succion dans le cas de la rupture d'un filament gazeux entouré de liquide, en l'absence de tout effet visqueux [35, 223].

Par ailleurs, Lister et Stone ont montré que le comportement dynamique du pincement à deux fluides visqueux doit suivre un régime de Stokes (expression (7.8)) lorsque le rayon du cou est inférieur à la longueur visqueuse $\mu\ell_\nu$ [218]. Compte tenu des propriétés du fluide considéré et

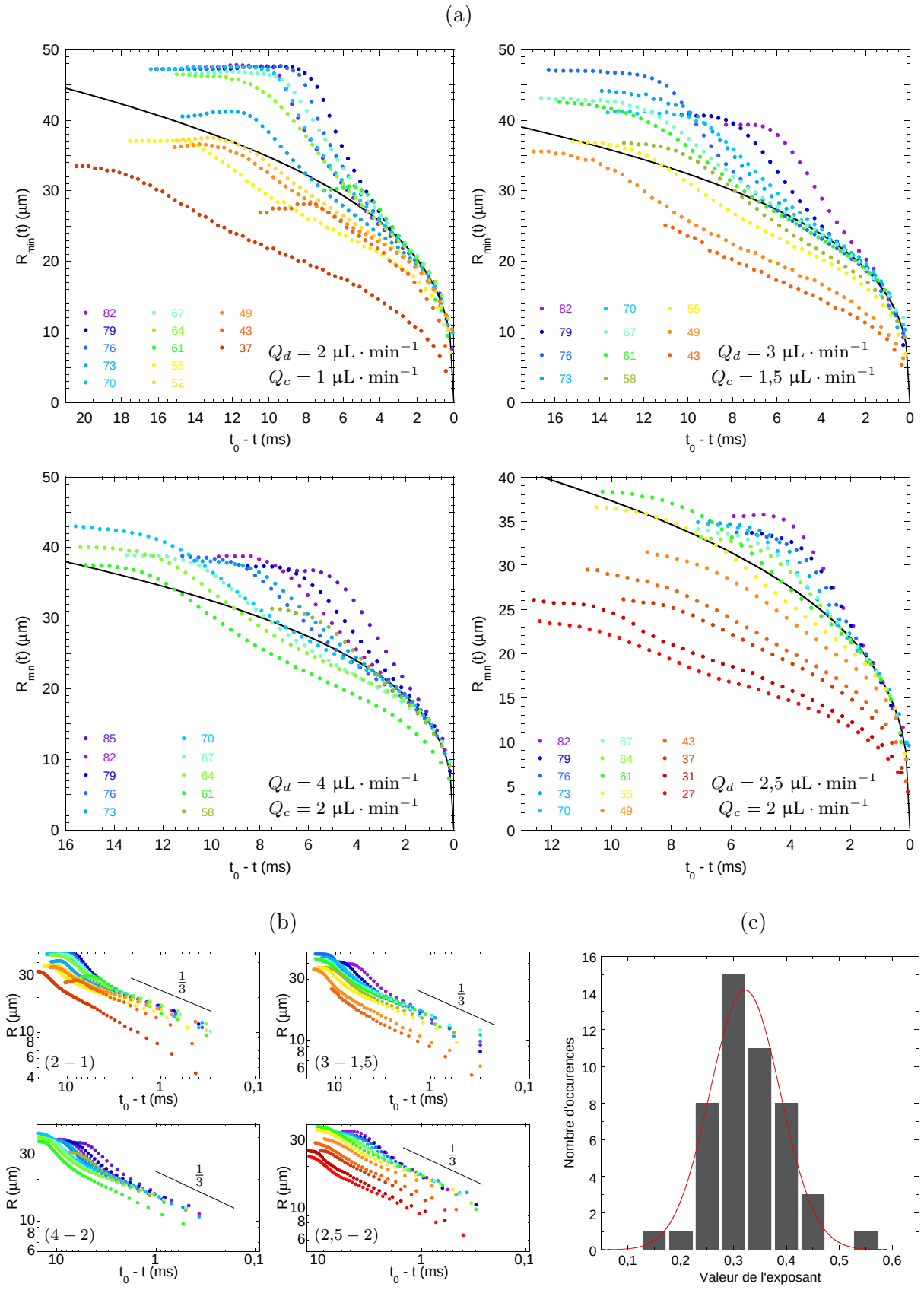

FIG. 7.16 – *Évolution du rayon minimum du jet à l'approche de la rupture, pour quatre couples de débits* $(Q_d - Q_c)$ *différents, tracés* (a) *en échelle linéaire et* (b) *en échelle logarithmique. Les chiffres indiqués en légende correspondent à la puissance laser en* mW. *La ligne continue est un ajustement des points suivant une dynamique commune par une loi de puissance d'exposant* $\frac{1}{3}$. (c) *Distribution des exposants associés à chaque dynamique déterminée individuellement.*

de la valeur estimée de la tension interfaciale, cette longueur est, dans notre cas, comprise entre quelques µm et quelques dizaines de µm. Notre connaissance des propriétés des fluides est donc insuffisante pour affirmer que la dynamique observée se situe au-delà ou en-deçà de cette valeur.

La dynamique observée peut donc correspondre à deux régimes distincts :
- Si la longueur visqueuse est de l'ordre de quelques µm, la résolution temporelle ne permet pas d'atteindre le régime de Stokes. La dynamique observée peut correspondre à un effet de succion.
- Si la longueur visqueuse est de l'ordre de quelques dizaines de µm, la dynamique de pincement doit suivre le régime de Stokes, linéaire en $t_0 - t$. La loi de puissance observée peut alors être la signature d'une évolution de la tension interfaciale.

Nous allons considérer successivement ces deux hypothèses, et discuter leurs conséquences.

Hypothèse d'un effet de succion

Considérons dans un premier temps la dynamique d'exposant $\frac{1}{3}$ relatée dans la littérature [223]. Cette loi d'échelle est obtenue par un équilibre entre les contraintes inertielles imposées au cou par le fluide externe et la pression dans le jet, avec l'hypothèse d'un débit maintenu constant à travers le cou. Les effets visqueux sont ignorés.

Pour évaluer la pression dans le cou, l'équation de Bernoulli est écrite entre un point du jet de rayon R_0 et le point de pincement, de rayon R_{min},

$$p_0 + \frac{1}{2}\rho_d \left(\frac{Q_d}{\pi R_0^2}\right)^2 = p_{cou} + \frac{1}{2}\rho_d \left(\frac{Q_d}{\pi R_{min}^2}\right)^2, \tag{7.20}$$

traduisant l'existence d'une dépression $\Delta p_d = p_{cou} - p_0$ au niveau du cou :

$$\Delta p_d = \frac{\rho_d}{2}\left(\frac{Q_d}{\pi}\right)^2 \left(\frac{1}{R_0^4} - \frac{1}{R_{min}^4}\right) < 0. \tag{7.21}$$

Lorsque $t \to t_0$, $\Delta p_d \to -\frac{\rho_d}{2}\left(\frac{Q_d}{\pi R_{min}^2}\right)^2$. L'équilibre avec les contraintes visqueuses imposées par le fluide externe s'écrit ainsi, en loi d'échelle,

$$\rho_c \frac{R_{min}}{(t_0 - t)^2} \sim \rho_d \frac{Q_d^2}{R_{min}^5}, \tag{7.22}$$

d'où

$$R_{min}(t) \sim \left(\frac{\rho_d}{\rho_c}\right)^{\frac{1}{6}} Q_d^{\frac{1}{3}} (t_0 - t)^{\frac{1}{3}}. \tag{7.23}$$

Cette dynamique fait intervenir l'inertie des deux fluides, et ne dépend pas de la tension interfaciale. Les effets visqueux étant ignorés, le nombre de Reynolds doit être grand.

Au niveau du cou, le nombre de Reynolds dans le jet s'écrit $\mathrm{Re} = \frac{Q_d}{\pi R_{min}\nu}$. Ce nombre est de l'ordre de l'unité, et croît à l'approche de la rupture. La transition $\mathrm{Re} = 1$ correspond à une valeur du rayon comprise entre 10 (pour $Q_d = 2\ \mu\mathrm{L}\cdot\mathrm{min}^{-1}$) et 20 µm (pour $Q_d = 4\ \mu\mathrm{L}\cdot\mathrm{min}^{-1}$). Le rayon du jet en-deçà duquel la loi de puissance est observée est de l'ordre de 25 µm pour tous les couples de débits considérés. Le nombre de Reynolds au début de cette dynamique est donc inférieur à l'unité, ce qui paraît difficilement compatible avec une description purement inertielle. D'autre part, le début de cette dynamique ne semble pas lié à une valeur critique du nombre de Reynolds, qui pourrait correspondre à une transition vers un régime où les effets visqueux deviennent négligeables. Sans être décisifs, ces deux arguments vont donc plutôt à l'encontre d'une interprétation inertielle de la dynamique observée.

Le préfacteur dépend du débit de la phase interne à la puissance $\frac{1}{3}$. Sa valeur attendue est de l'ordre de 30 $\mu\text{m} \cdot \text{ms}^{-\frac{1}{3}}$, comparable à la valeur issue de l'ajustement. La dépendance en Q_d n'est pas retrouvée expérimentalement sur la gamme de débits étudiée. Cependant, cette dépendance étant faible — un doublement du débit entraîne une augmentation du préfacteur de 25 % —, trouver un préfacteur apparemment constant ne permet pas d'écarter cette hypothèse.

Les profils au voisinage du cou prévus dans ce régime par les simulations numériques ont une forme courbée, légèrement asymétrique de part et d'autre du cou [223]. La forme que nous observons au cours du pincement est compatible avec ces profils, sauf aux temps très courts (dernière image avant la rupture sur la figure 7.15, à $P = 43$ mW), où la forme en double cône asymétrique rappelle plutôt celle correspondant au régime de Stokes. Cette observation constitue un argument fort en faveur de l'hypothèse selon laquelle la dynamique caractérisée ici n'est pas l'ultime dynamique avant la rupture. Cette dernière dynamique doit alors pouvoir être observée et caractérisée avec une meilleure résolution.

Hypothèse d'un effet de tension interfaciale dynamique

Une autre idée pour expliquer la dynamique observée, suggérée par les récents travaux de thèse de Matthieu Roché au sein du laboratoire, serait d'y voir la signature d'effets de tension interfaciale dynamique [237,238]. De tels effets pourraient notamment résulter d'une redistribution du tensioactif à l'interface.

Supposant la longueur visqueuse $\mu\ell_\nu$ supérieure au rayon du jet, la dynamique doit correspondre au régime de Stokes à deux fluides (7.8). La vitesse du pincement étant directement proportionnelle à la tension interfaciale, on peut évaluer son évolution à partir de la pente locale de $R_{min}(t)$,

$$\sigma(t) = \frac{\eta_c}{\mathcal{H}(\mu)} \frac{\mathrm{d}R_{min}}{\mathrm{d}t}. \tag{7.24}$$

Compte tenu du rapport des viscosités, $\mu = \frac{\eta_c}{\eta_d} \simeq 3$, la valeur de $\mathcal{H}(\mu)$ est environ 6×10^{-2} [221]. On détermine alors l'évolution de la tension interfaciale à l'approche de la rupture, pendant le temps où la dynamique du rayon est supposée suivre le régime de Stokes. Cette évolution est représentée, pour une série de puissances laser associée à un couple de débits, sur la figure 7.17.

Les tensions interfaciales ainsi calculées sont dans l'ordre de grandeur attendu, évoluant typiquement de 0,1 à 1 $\text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$. L'évolution du rayon du jet suivant un comportement en $(t_0 - t)^{\frac{1}{3}}$, indépendant de la puissance laser, conduit à une évolution de la tension interfaciale en $(t_0 - t)^{-\frac{2}{3}}$, également indépendante de la puissance.

La transition entre le régime de déformation thermocapillaire et le régime de Stokes correspond au point d'inflexion de la courbe $R_{min}(t)$, c'est-à-dire au point où la déformation thermocapillaire — donc l'élévation de tension interfaciale due à l'échauffement — est maximale. Autrement dit, la valeur initiale de chaque courbe $\sigma(t)$ correspond à la valeur de la tension interfaciale à l'issue du chauffage. Cette valeur doit donc être d'autant plus grande que la puissance laser est élevée, comme on peut l'observer sur la figure.

L'élévation de tension interfaciale à l'approche de la rupture, représentée sur la figure 7.17, ne résulte pas du chauffage. On peut l'interpréter de la manière suivante. Au cours de la déformation, l'aire interfaciale augmente. Si la migration du tensioactif — depuis l'interface ou depuis le volume — est plus lente que la croissance de l'aire, la concentration en tensioactif diminue, et doit tendre localement vers zéro. Ainsi, la tension interfaciale devrait augmenter localement, jusqu'à atteindre la valeur correspondant à l'interface eau-hexadécane nue ($55\ \text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$). Cette saturation doit se traduire par l'observation d'une dynamique du rayon linéaire en $t_0 - t$.

Discussion de ces deux hypothèses

L'hypothèse d'une variation de la tension interfaciale est plausible compte tenu des ordres de grandeur obtenus. Elle ne peut cependant justifier l'exposant $\frac{1}{3}$ de la dynamique de pincement

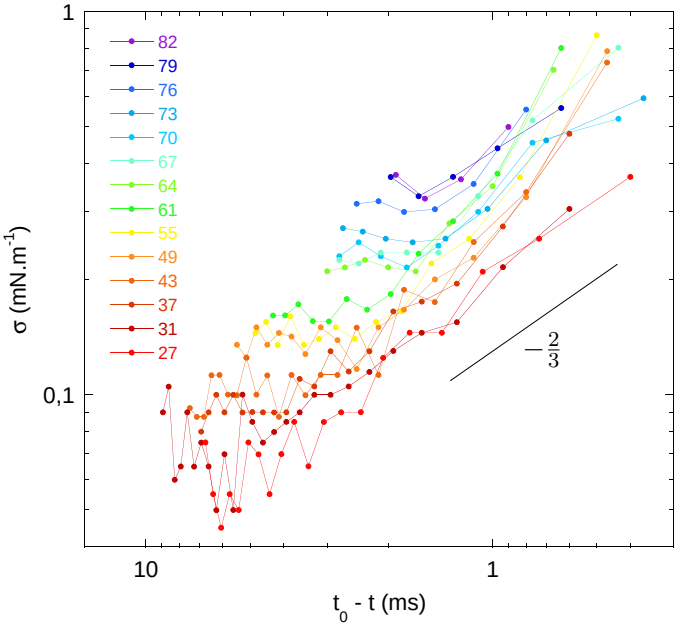

Fig. 7.17 – *Tension interfaciale dynamique évaluée à partir de* (7.24)*, pour différentes puissances laser (indiquées en légende en* mW*), et pour les débits* $Q_d = 2{,}5\ \mu\mathrm{L}\cdot\mathrm{min}^{-1}$ *et* $Q_c = 2\ \mu\mathrm{L}\cdot\mathrm{min}^{-1}$.

que sur la base d'une évolution de la tension interfaciale en $(t_0 - t)^{-\frac{2}{3}}$, qui ne repose elle-même sur aucun argument physique. Par ailleurs, l'allure des profils d'interface au voisinage du cou n'est pas cohérente avec celle correspondant au régime de Stokes.

Si elle paraît plus satisfaisante du point de vue des profils d'interface, l'hypothèse d'un effet de succion souffre d'une cohérence logique plus limitée. La valeur du nombre de Reynolds paraît en effet trop faible pour appliquer un raisonnement ignorant tout effet visqueux. En outre, le fait que la transition entre la déformation thermocapillaire et le régime « proche de la rupture » discuté dans cette section se produise à rayon fixé et non à nombre de Reynolds fixé va à l'encontre de l'hypothèse inertielle. Ce fait constitue plutôt un argument en faveur de l'hypothèse visqueuse, le régime universel de Stokes étant attendu en-deçà d'une longueur caractéristique des fluides considérés.

Il apparaît donc nécessaire de réaliser de nouvelles mesures, avec une plus grande résolution temporelle, pour pouvoir trancher définitivement :

- Dans l'hypothèse d'un effet de succion, on devrait alors observer un comportement suivant (7.8), linéaire en $t_0 - t$ en-deçà de la longueur visqueuse. La pente associée à ce régime doit correspondre à la tension interfaciale en présence des deux tensioactifs (de l'ordre de 0,1 à 1 $\mathrm{mN}\cdot\mathrm{m}^{-1}$).
- Dans l'hypothèse d'un effet de tension interfaciale dynamique, on devrait également retrouver un comportement linéaire en $t_0 - t$ à la saturation. La pente doit alors correspondre à une valeur de la tension interfaciale inférieure ou égale à celle associée à l'interface nue ($55\ \mathrm{mN}\cdot\mathrm{m}^{-1}$).

Une expérience à pression imposée pourrait également apporter un éclaircissement. Dans ce cas, le débit à travers le jet peut s'adapter aux variations de pression induites par la déformation, et l'effet de succion devrait disparaître.

Épilogue : mesures à plus haute cadence

Le même couple de fluides et les mêmes tensioactifs ont été employés. Cependant, le remplacement du laser Ar^+ ($\lambda_0 = 514{,}5$ nm) par un laser continu $Nd^{3+} : YAG$ doublé (Coherent

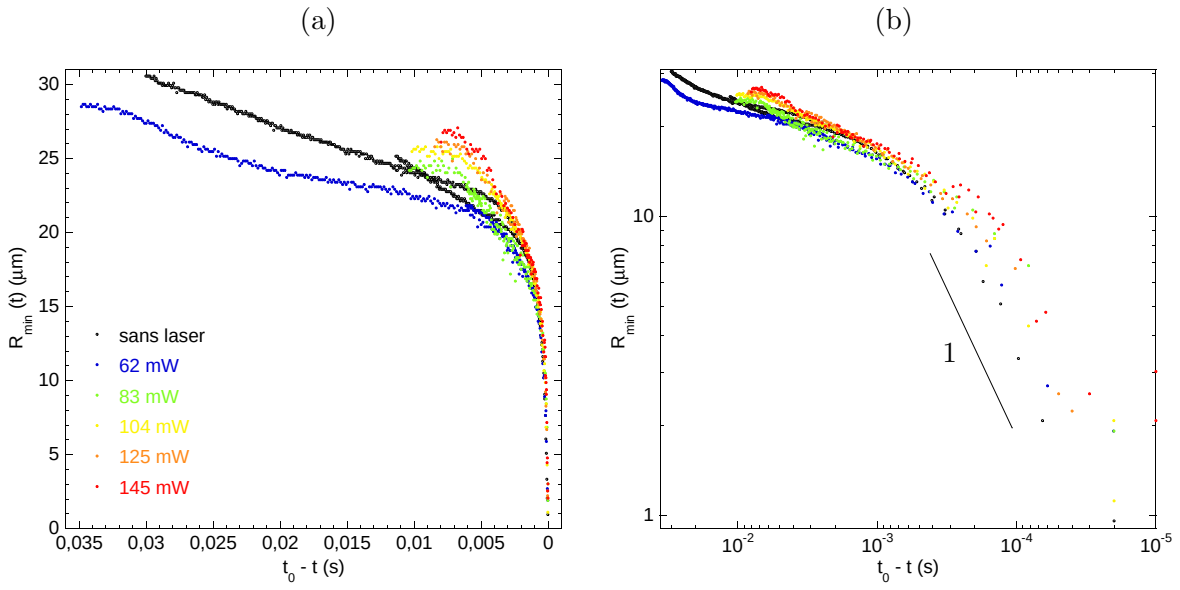

FIG. 7.18 – *Évolution du rayon minimum sans laser, et à différentes puissances,* (a) *en échelle linéaire,* (b) *en échelle logarithmique.*

Verdi V5, $\lambda_0 = 532$ nm) a imposé d'utiliser le colorant alimentaire E122 à la place de l'uranine, transparente à cette longueur d'onde.

La dynamique du rayon du cou au voisinage de la rupture a été suivie en utilisant une caméra Dantec Nanosense Mk II, à une cadence comprise entre 6 900 et 31 500 images par seconde. Un objectif ×50 est utilisé pour la focalisation du faisceau et l'observation.

Deux cas de rupture ont été considérés :

- la rupture d'un jet forcée par laser ($Q_d = 4\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}, Q_c = 1{,}2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$) ;
- la rupture du cou, au niveau de la croix, sans forçage particulier. Obtenir des gouttes suppose alors de modifier les débits, et on fixe $Q_d = 0{,}2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $Q_c = 1\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$.

On cherche à caractériser la dynamique proche — à l'échelle sub-milliseconde — de la rupture. À cette échelle, l'influence des débits est négligeable devant les effets élongationnels.

Les dynamiques mesurées sont représentées sur la figure 7.18 (a). Initialement lente, la dynamique de pincement accélère brutalement au cours des dernières 5 ms. À l'approche de la rupture, toutes les courbes se rejoignent : la dynamique aux temps courts est donc indépendante de la puissance laser et des débits.

Ces dynamiques sont représentées en échelle logarithmique sur la figure 7.18 (b). À partir de $t_0 - t \lesssim 0{,}3$ ms, soit pour $R_{min} \lesssim 10$ µm, le pincement suit une évolution linéaire, indépendante des conditions initiales (avec ou sans laser). L'observation de ce régime linéaire signifie donc :

- soit que la longueur $\mu\ell_\nu$ est atteinte, et on observe alors la transition entre le régime inertiel et le régime visqueux ;
- soit que la tension interfaciale a atteint un état d'équilibre.

Une évaluation de la pente moyenne dans le régime linéaire final fournit une vitesse de pincement d'environ $5\ \text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$, ce qui conduit à $\sigma \simeq 3\ \text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$. Cette valeur est compatible avec l'hypothèse d'une déplétion partielle de l'interface — la tension interfaciale associée à l'interface eau-hexadécane nue est $55\ \text{mN} \cdot \text{m}^{-1}$.

L'exposant $\frac{1}{3}$ de la loi de décroissance du rayon discutée au début de cette section correspond à des mesures réalisées avec une cadence vidéo jusqu'à 10 fois plus petite que celles représentées sur la figure 7.18. La pertinence de cet exposant est ainsi remise en cause par la détermination insuffisamment précise de l'instant de rupture t_0.

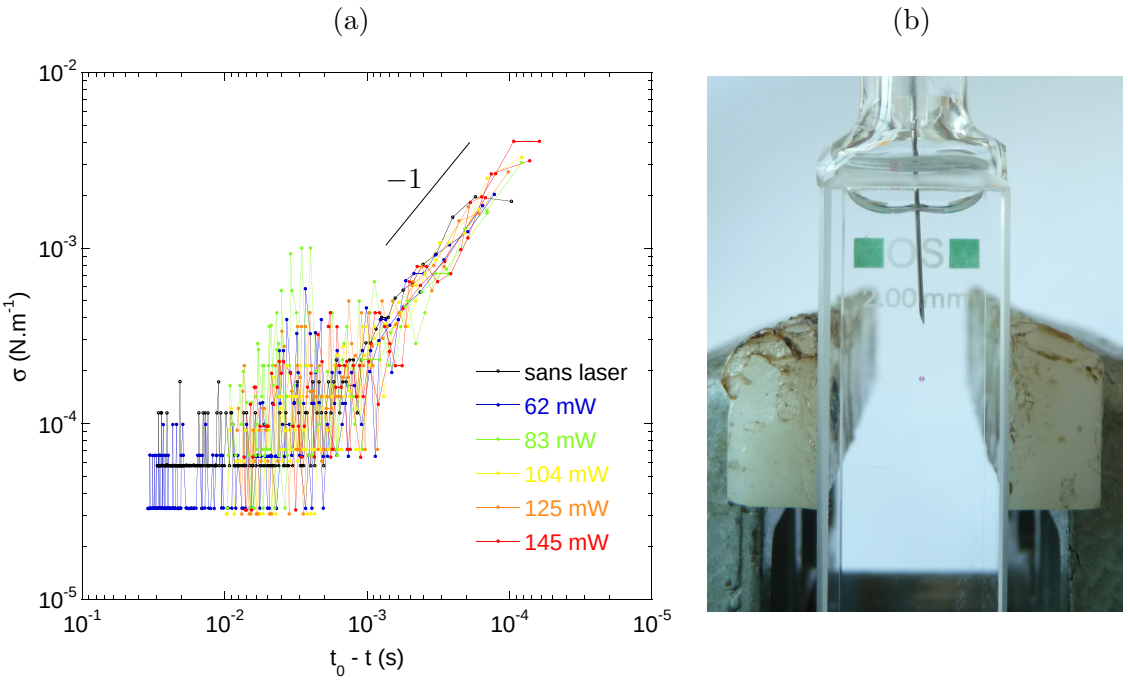

Fig. 7.19 – (a) *Évolution de la tension interfaciale déduite de la dynamique d'évolution du rayon minimum sans laser, et à différentes puissances.* (b) *Évaluation de la tension interfaciale en l'absence d'écoulement par la méthode de la goutte tombante.*

On suppose que la longueur $\mu\ell_\nu$ est plus grande que le rayon du jet dès le début du pincement. La tension interfaciale instantanée est alors déduite de la pente locale des courbes $R_{min}(t)$, et représentée sur la figure 7.19 (a).

Les courbes suivent une tendance générale commune, qui peut être décomposée en trois parties. Loin de la rupture (pour $t_0 - t > 1$ ms), la tension interfaciale évolue lentement. Aux temps plus longs, elle semble même constante et égale à une valeur de l'ordre de 5×10^{-5} N $\cdot$ m^{-1}, comme on peut l'observer par la présence de zones d'évolution linéaire sur les courbes $R_{min}(t)$ (figure 7.18 (a)). Sur ces dernières courbes, on observe également, à cette échelle de temps, une croissance de la vitesse de pincement avec la puissance laser, ce qui traduit une augmentation de la tension interfaciale avec la puissance. Il est cependant difficile de retrouver cette tendance sur la figure 7.19 (a), compte tenu du bruit important dont sont entachées les mesures.

Plus près de la rupture, pour 0,2 ms $< t_0 - t <$ 1 ms, la tension interfaciale augmente d'un ordre de grandeur. Cette augmentation suit un comportement en loi de puissance de $t_0 - t$, d'exposant proche de -1. Ce comportement est indépendant de l'excitation laser.

Enfin, aux instants ultimes (pour $t_0 - t <$ 0,2 ms), la tension interfaciale sature à une valeur d'équilibre ($\sigma \simeq 3 \times 10^{-3}$ N $\cdot$ m^{-1}), correspondant au régime linéaire final.

Une évaluation de la longueur visqueuse est nécessaire pour valider le raisonnement précédent. Pour cela, on cherche à déterminer, à défaut de sa valeur précise, du moins un ordre de grandeur de la tension interfaciale au repos.

La méthode de la goutte pendante consiste à mesurer le volume d'une goutte lorsqu'elle se détache d'un capillaire. L'équilibre entre le poids apparent et la force capillaire est décrit par la loi de Tate,

$$\frac{4}{3}\pi R_g^3 \left(\rho_d - \rho_c\right) g \simeq 2\pi R_c \sigma \tag{7.25}$$

dans le cas d'une goutte sphérique de rayon R_g issue d'un capillaire de rayon externe R_c, et sans tenir compte du coefficient de forme du capillaire.

La mesure est réalisée dans une cellule Hellma de 2 mm d'épaisseur, remplie d'huile, dans

laquelle est fichée l'aiguille métallique d'une seringue (figure 7.19 (b)). Le diamètre extérieur de l'aiguille est 330 µm. Le piston de la seringue est poussé manuellement, conduisant à la formation et au détachement de gouttes dont la mesure du rayon fournit une valeur de la tension interfaciale $\sigma \simeq 6 \times 10^{-5}$ N · m^{-1}. Cette valeur est inférieure d'un ordre de grandeur à l'intervalle d'estimation présentée à la section 7.2.2, qui ne repose pas sur une mesure directe mais est déduite d'une synthèse de travaux différents. L'ordre de grandeur de la tension interfaciale est donc plus vraisemblablement celui mesuré ici.

Cette valeur de la tension interfaciale est comparable à celle déduite de la dynamique de pincement aux temps longs (figure 7.19 (a)). Elle conduit à une longueur visqueuse $\mu\ell_\nu \simeq 50$ µm largement supérieure au rayon du jet au cours du pincement, ce qui confirme la pertinence de l'interprétation en termes de tension interfaciale dynamique, et exclut l'interprétation inertielle.

Les mesures complémentaires présentées ici ont permis de trancher en faveur de l'hypothèse d'un effet de tension interfaciale dynamique et d'exclure l'hypothèse de succion pour expliquer la dynamique de pincement observée. Aux temps courts, la tension interfaciale augmente de plus d'un ordre de grandeur, indépendamment des conditions initiales — que le pincement ait été initié ou non par laser —, et sature à une valeur proche de 3 mN · m^{-1}. Cette saturation montre qu'un état d'équilibre est atteint, en présence de molécules de tensioactif, la tension interfaciale étant significativement inférieure à celle associée à l'interface nue.

L'évolution de la tension interfaciale reste cependant à expliquer. L'accroissement de l'aire interfaciale sous l'effet de contraintes élongationnelles pourrait, si elle est plus rapide que les transferts de tensioactifs, conduire à une déplétion locale. L'étude de la dynamique d'élongation du jet constitue ainsi une piste d'investigation expérimentale. Par ailleurs, ces mesures montrent l'importance des effets de tension interfaciale dynamique lorsqu'une interface est soumise à de fortes contraintes hydrodynamiques.

D'un point de vue applicatif, la mesure de la dynamique de pincement en microcanal constitue un moyen d'évaluer la dynamique de très faibles tensions interfaciales [239–241].

7.2.5 Bilan

Nous avons montré dans cette section que le pincement thermocapillaire conduit à une déformation de l'interface d'un jet confiné, suivant une dynamique qui lui est propre. Lorsque l'amplitude de cette déformation est suffisante pour déstabiliser le jet, celui-ci rompt, suivant une dynamique distincte de la dynamique du pincement initial.

Cette dynamique en deux étapes suggère une analogie de comportement avec les processus de formation de gouttes en milieu confiné. En particulier, une analogie avec la géométrie à focalisation d'écoulement, présentée à la section 1.1.4, est fortement suggérée, le pincement thermocapillaire pouvant être vu comme une « striction sans mur ». Le régime de fort confinement *(squeezing)* est caractérisé par une dynamique d'affinement en deux étapes, analogue à la dynamique que nous avons caractérisée. La première étape est pilotée par le fluide externe, qui renforce le confinement d'un filament fluide (stable), jusqu'à le rendre instable. L'instabilité du filament conduit alors à sa rupture (seconde étape), suivant une dynamique propre. Lorsque le confinement est moindre, la rupture se produit plus loin de la striction, définissant les régimes de *dripping* et *jetting*.

Dans notre cas, le degré de confinement du jet est piloté *via* l'amplitude de la déformation thermocapillaire. On observe également, lorsque cette déformation conduit à un moindre confinement, l'éloignement du point de rupture du jet, comme dans le cas des régimes de *dripping* et *jetting*.

Le pincement thermocapillaire peut ainsi être vu comme un moyen de transformer un écoulement parallèle *(co-flow)* continu et stable en un écoulement focalisé *(flow focusing)* sans intervention sur la géométrie du microcanal. Cette technique semble donc particulièrement adaptée à la génération de gouttes calibrées à haut débit.

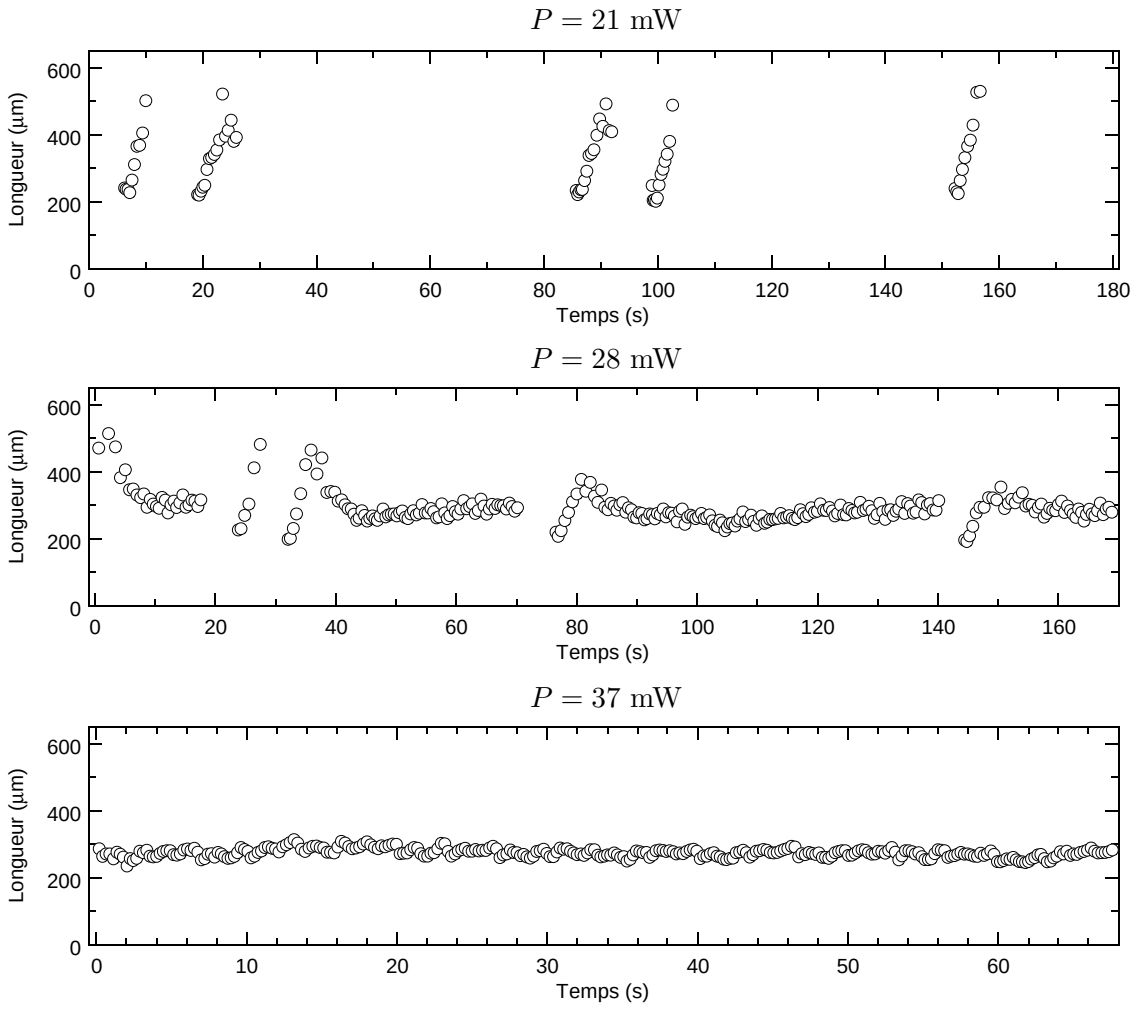

Fig. 7.20 – *Taille des gouttes mesurée sur de longues durées, pour trois puissances laser. Débit d'eau :* $Q_d = 2\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ *; débit d'huile :* $Q_c = 1\ \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ *;* $\omega_0 = 5{,}52\ \mu\text{m}$.

7.3 Génération de gouttes

Dans cette section, le régime d'écoulement stationnaire considéré jusqu'ici est caractérisé aux temps longs, dans le cadre d'une excitation continue. Nous caractérisons ensuite les gouttes formées.

7.3.1 Du régime de jet au régime de goutte à goutte

L'image naïve que nous avons présentée plus haut dans ce chapitre (section 7.2.2) consiste à dire que le pincement du jet conduit à sa déstabilisation au-delà d'une déformation — donc une puissance laser — seuil. Dans une telle vision, la production de gouttes doit se produire de manière permanente une fois ce seuil franchi. Cependant, nous avons également observé que le pincement thermocapillaire s'accompagne de la formation d'un bourrelet amont, qui modifie en retour les conditions de confinement du jet, et peut renforcer localement sa stabilité. La transition entre un régime de jet et un régime de goutte à goutte peut alors présenter un caractère instationnaire, résultant des effets contraires — pincement et gonflement — induits par la déformation.

Nous avons donc caractérisé, sur des temps longs — de l'ordre de plusieurs minutes —, l'écoulement soumis à une excitation non modulée. Cette caractérisation est réalisée avec le dispositif présenté au chapitre 6. Le capteur est sensible au passage de l'ombre d'un ménisque,

il ne détecte donc pas un écoulement continu. Ainsi, l'absence de signal renvoyé par le dispositif s'interprète comme un écoulement en régime de jet, tandis que les gouttes sont directement mesurées lorsque le jet est rompu.

Un exemple de caractérisation de l'écoulement est représenté sur la figure 7.20, pour trois puissances laser.

À 21 mW, des gouttes sont détectées de manière très ponctuelle. Le jet se brise plusieurs secondes après le début de l'excitation. La taille des gouttes formées varie notablement, typiquement entre 200 et 500 µm. Le jet se reforme ensuite spontanément, sans qu'un régime de goutte à goutte « stationnaire » [2] ait été atteint.

À plus grande puissance laser, 28 mW sur la figure, la brisure du jet conduit à un régime de goutte à goutte stationnaire. Cependant, comme dans le cas précédent, le jet se reforme spontanément au bout de plusieurs dizaines de secondes, avant de se briser à nouveau.

Enfin, la brisure du jet est observée de manière permanente, dans ces conditions de débits, à 37 mW.

La coexistence entre deux états topologiques — continu et discret — sur des durées significatives montre que les deux états présentent une certaine stabilité à conditions données. La durée de chacun de ces états est de l'ordre de la dizaine de secondes. Elle est donc très supérieure au temps caractéristique associé à une génération de goutte individuelle, mais comparable au temps de séjour d'une tranche de fluide dans le microcanal. On peut donc penser que la transition entre les deux états est associée à un argument basé sur l'histoire de l'écoulement au sein du canal plutôt qu'à une rétroaction à l'échelle individuelle, liée au bourrelet amont, lors de la formation des gouttes.

Il n'apparaît donc pas possible de définir une puissance seuil de brisure. On peut en revanche caractériser la transition entre les deux états en termes probabilistes. La durée cumulée des intervalles où des gouttes ont été détectées (resp. des intervalles sans signal), rapportée à la durée totale de l'acquisition, donne ainsi la proportion de liquide écoulé sous forme de gouttes (resp. de jet). Cette proportion est évaluée pour chaque puissance laser. La figure 7.21 représente ainsi la transition entre les deux états pour trois couples de débits. Ces trois couples de débits sont à rapport constant, le rayon du jet au repos — et ainsi sa stabilité — est donc le même dans ces trois cas.

La proportion de gouttes croît continûment avec la puissance laser. La transition se produit sur un intervalle de puissance dont les bornes varient linéairement avec les débits. On a vu précédemment que l'amplitude de la déformation thermocapillaire ne dépend que de la puissance, et pas des débits (figure 7.14). Une déformation plus grande est donc nécessaire pour briser le jet lorsque les débits sont plus élevés. Cette observation confirme que la rupture du jet n'est pas exclusivement pilotée par l'amplitude du pincement thermocapillaire.

Néanmoins, il apparaît indispensable d'atteindre un seuil de déformation pour envisager la rupture du jet. Pour le premier couple de débits ($Q_d = 2$ µL $\cdot$ min^{-1} et $Q_c = 1$ µL $\cdot$ min^{-1}), l'amplitude de cette déformation minimale est de l'ordre de 4 µm (à $P = 20$ mW) d'après la figure 7.14. Comme le jet au repos a un rayon de 30 µm, cette valeur conduit à un rayon de 26 µm, très proche de la demi-hauteur du canal. Ainsi, une condition nécessaire à la déstabilisation du jet est le passage d'une géométrie localement confinée à une géométrie localement tridimensionnelle.

Par ailleurs, on remarque la présence d'anomalies à certaines puissances : à ces puissances, le régime de goutte à goutte est favorisé. Ces anomalies suggèrent une interaction optimisée entre le pincement et le gonflement du jet au cours de la déformation. La physique de la transition semble donc résulter d'un couplage entre des phénomènes associés à l'échelle du canal et à celle

2. Dans le sens où la distribution en taille des gouttes est bien définie. L'écoulement n'est cependant pas stationnaire *stricto sensu* dans la mesure où sa topologie change au cours du temps. Dans la suite de ce chapitre, ce terme s'entend avec le sens défini ici.

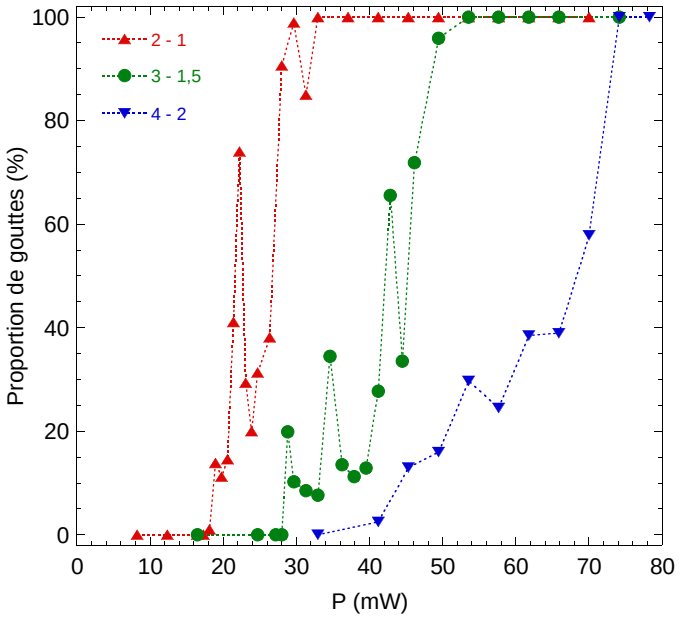

Fig. 7.21 – *Évolution de la proportion de gouttes (x % de gouttes signifie qu'un jet existe au niveau du détecteur* $(100 - x)$ *% du temps total d'acquisition) avec la puissance laser, pour trois couples de débits* $(Q_d - Q_c)$ *exprimés en* $\mu L \cdot min^{-1}$. *Le rayon au col est* $\omega_0 = 5{,}52$ µm.

de la goutte.

7.3.2 Caractérisation des gouttes

La caractérisation des gouttes fait apparaître l'existence d'une dynamique séquentielle riche. Des gouttes monodisperses peuvent être produites, comme illustré sur la figure 7.20 dans les deux cas où un régime stationnaire est atteint. Alternativement, la production des gouttes peut suivre des séquences régulières, bien définies, faisant intervenir plusieurs gouttes. Les différentes séquences identifiées sont représentées sur la figure 7.22.

L'alternance d'une goutte longue et d'une goutte courte constitue une séquence élémentaire de 2 gouttes (figure 7.22 (a)). Une séquence élémentaire de 3 gouttes (figure 7.22 (b)) est constituée de la succession d'une goutte courte (1), d'une goutte longue (2) et d'une goutte courte (3), plus petite que la première. Notons que, curieusement, l'alternance inverse ($3 \rightarrow 2 \rightarrow 1$) n'est que très rarement observée.

Ces séquences élémentaires peuvent se combiner en séquences plus complexes. Ainsi, une séquence de 4 gouttes (figure 7.22 (c)) peut être vue comme l'alternance de deux séquences de 2 gouttes significativement différentes : les gouttes 1 et 2 sont plus grandes que les gouttes 3 et 4.

Ces trois séquences peuvent être observées de manière régulière. Trois autres séquences, plus rares et apparaissant de manière sporadique, ont également été identifiées :

- une séquence de 5 gouttes (figure 7.22 (d)), constituée d'une alternance entre une séquence de 2 gouttes et une séquence de 3 gouttes ;
- une séquence de 6 gouttes (figure 7.22 (e)), alternance entre deux séquences distinctes de 3 gouttes ;
- une séquence de 8 gouttes (figure 7.22 (f)), succession d'une séquence de 4 gouttes et d'une séquence de 3 gouttes, dont la dernière goutte est suivie d'une goutte supplémentaire identique.

Ces séquences sont observées dans des conditions expérimentales données. La figure 7.23 associe les principales séquences observés à la puissance laser, pour les trois couples de débits considérés. Sur la série de graphes de gauche, la longueur moyenne des gouttes associées à une

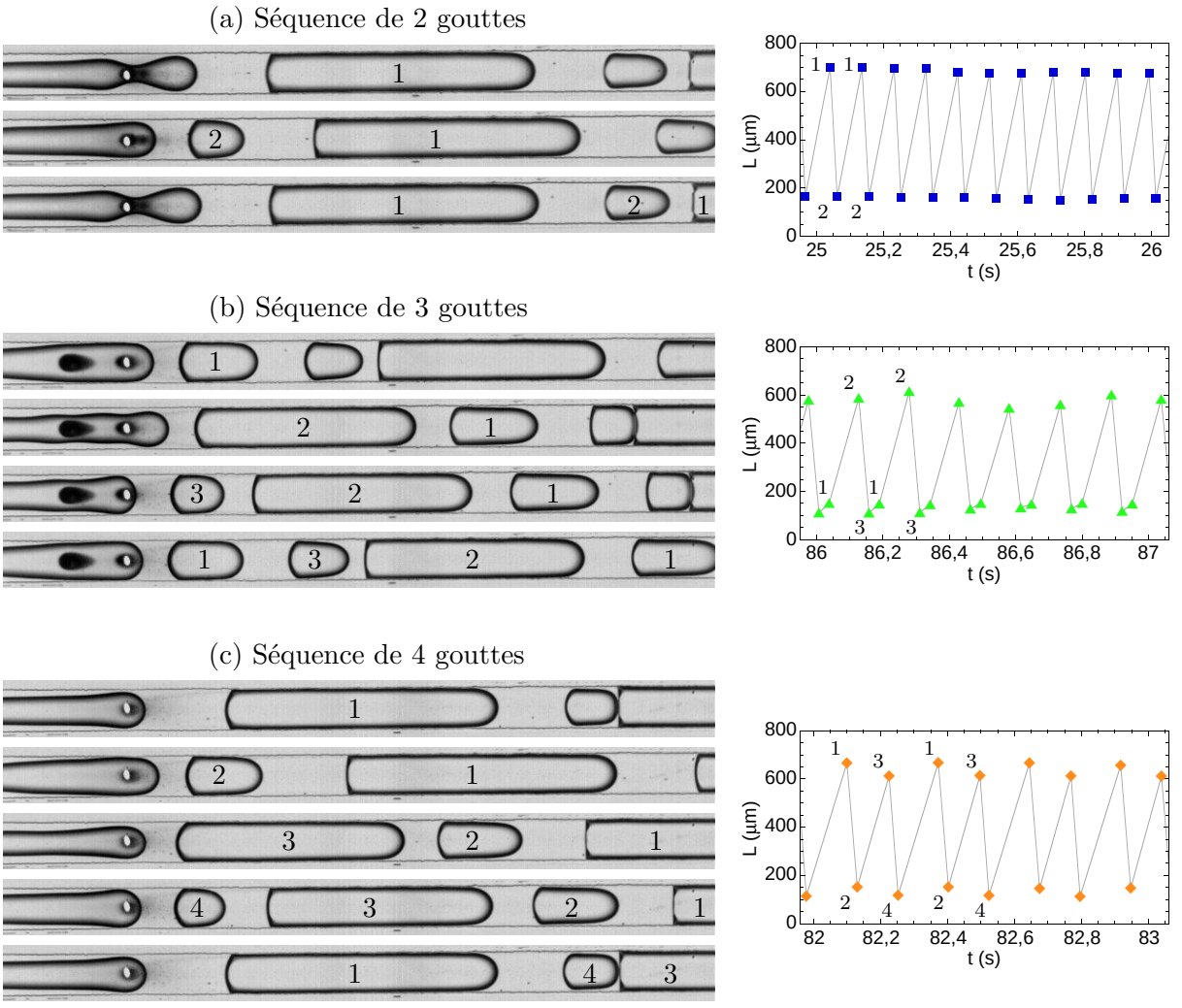

FIG. 7.22 – *Séquences d'émission de gouttes observées. Les valeurs des débits (Q_d et Q_c) correspondant à ces données sont respectivement (en* $\mu L \cdot min^{-1}$*) :* (a) 3 *et* 1,5, (b-d) 2 *et* 1 *et* (e, f) 4 *et* 2. *Puissances laser :* (a, b) 54 mW, (c) 45 mW, (d) 49 mW, (e) 66 mW *et* (f) 62 mW.

séquence donnée est tracée en fonction de la puissance laser. Les graphes sur la colonne de droite représentent des exemples de tailles mesurées sur la durée d'acquisition, pour des puissances données, dans le cas du premier couple de débits. Bien qu'une séquence particulière apparaisse majoritaire à conditions données, plusieurs séquences différentes peuvent se succéder sur des temps de l'ordre de la minute, par exemple à 41 mW. On remarque aussi que la taille des gouttes au sein d'une séquence est relativement bien définie à cette échelle de temps.

L'allure générale des graphes illustrant la répartition des principales séquences selon la puis-

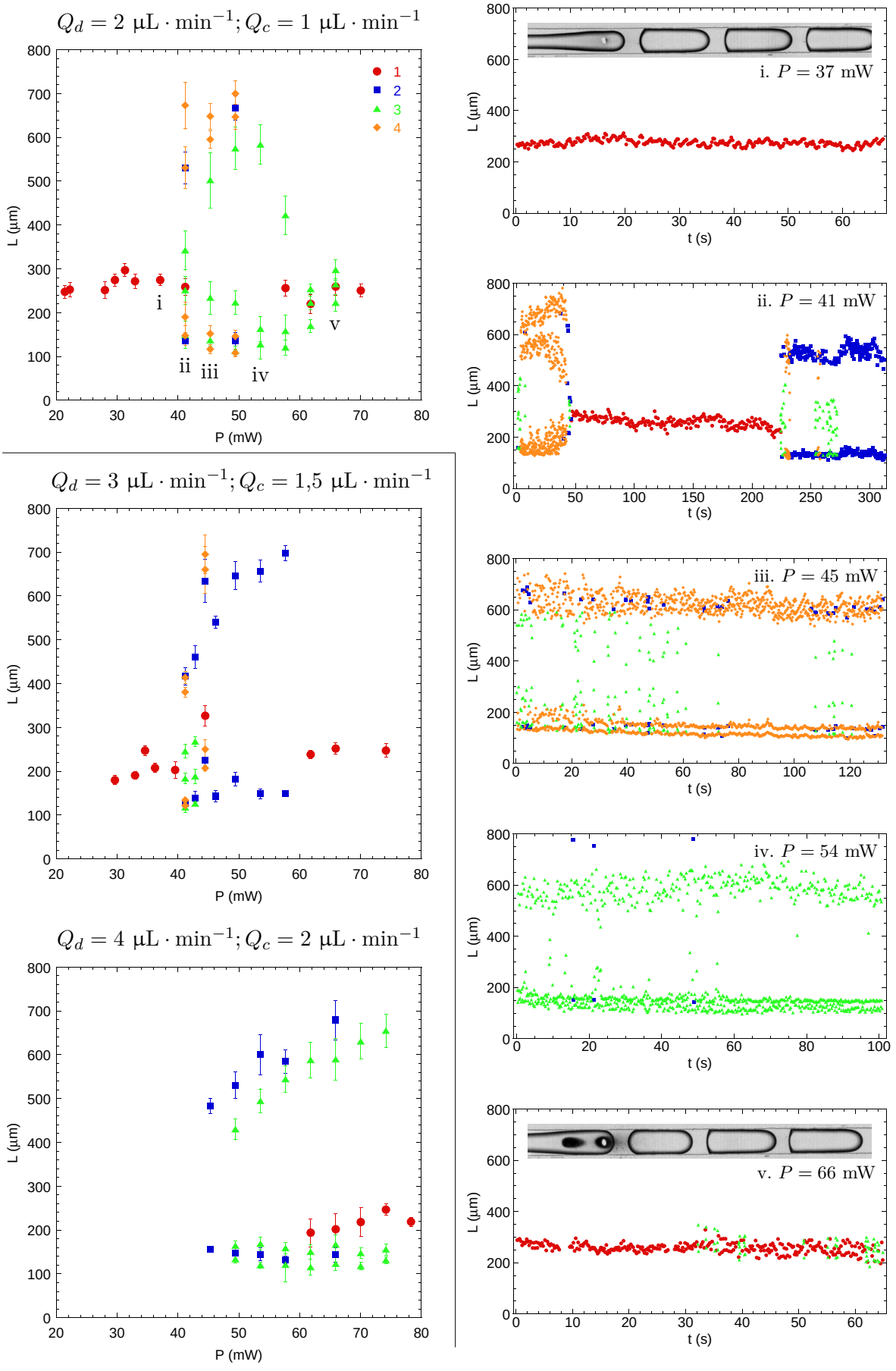

FIG. 7.23 – *Gauche : répartition des principales séquences d'émission de gouttes en fonction de la puissance laser pour différents couples de débits. Droite : exemples de mesures illustrant ces séquences, pour le premier couple de débits. Les symboles sont associés aux séquences définies sur la figure 7.22.*

sance laser est qualitativement comparable pour les trois couples de débits étudiés, bien que les séquences observées ne soient pas les mêmes. À petite puissance, des gouttes monodisperses (séquence à une goutte) sont formées (graphe i). Vers 40 mW, une transition donne lieu à la coexistence de plusieurs séquences (graphe ii). Une séquence de plusieurs gouttes successives (2, 3 — graphe iv — ou 4 — graphe iii — selon la puissance et les débits) devient alors dominante. Augmentant encore la puissance, au-delà de 60 mW environ, on retrouve majoritairement des gouttes monodisperses (graphe v). Remarquons que, si la taille des gouttes varie avec la puissance dans le cas des séquences multiples, celle des gouttes monodisperses est voisine de 250 µm quelles que soient les conditions expérimentales.

Cette dernière observation suggère que cette taille est intrinsèque au couple de fluides utilisé. Compte tenu du rapport des viscosités des deux fluides, le mode le plus instable déterminé à partir du calcul de Tomotika [195] est tel que $kR = 0{,}59$. Pour un jet tridimensionnel, de rayon $R = 25$ µm, la longueur d'onde correspondant à ce mode est $\lambda = 266$ µm, très proche de la longueur des gouttes monodisperses. L'émission des gouttes résulte donc vraisemblablement de l'amplification du mode le plus instable du jet.

Plusieurs publications mentionnent la coexistence de populations distinctes de gouttes lors de la rupture d'un cylindre liquide. Ces séquences sont associées au régime appelé *dripping faucet* (littéralement, « robinet qui goutte ») dans le cas d'une goutte pendante [15, 242]. En géométrie confinée, elles ont été observées dans les trois configurations présentées au chapitre 1 : écoulements parallèles [201], croisés [20] ou focalisés [33, 38, 39]. Le générateur de gouttes se comporte alors comme un système dynamique non linéaire, qui peut être périodique ou chaotique, dont un exemple a été évoqué au chapitre 1 et est représenté sur la figure 1.8. Cette dynamique est généralement associée à la transition entre deux régimes de formation des gouttes : entre *dripping* et *jetting* pour des jets non confinés [15], entre *squeezing* et *dripping* lorsque la formation des gouttes fait intervenir le confinement.

L'analogie que nous avons proposée à la section 7.2.5 entre le pincement thermocapillaire et la focalisation d'écoulement permet d'interpréter cette dynamique non linéaire en termes de transition entre deux régimes d'écoulement pilotés par des degrés de confinements différents. Les images de l'écoulement en-deçà et au-delà de la transition appuient cette interprétation. Dans le premier cas (encart du graphe i sur la figure 7.23), le jet ne touche pas les parois du canal au voisinage de la zone de pincement. Au-delà de la transition (encart du graphe v), le jet est contraint par les parois du canal et présente donc un confinement plus fort.

Le pincement thermocapillaire induit par une excitation continue permet donc la génération de gouttes mono- ou multidisperses, selon l'amplitude de l'excitation. Le régime monodisperse est particulièrement pertinent dans le contexte d'éventuelles applications au laboratoire sur puce. Cependant, l'absence de contrôle sur la taille des gouttes obtenues semble constituer un frein à cette technique dans ce contexte applicatif. Moduler le faisceau laser doit permettre de contourner cette limitation.

7.3.3 Excitation modulée : un échantillonneur optofluidique

Nous avons vu (figure 7.8) que le pincement thermocapillaire du jet soumis à une excitation continue crée un bourrelet en amont du faisceau. Moduler l'excitation, de manière à favoriser l'advection des bourrelets, devrait ainsi favoriser la brisure du jet, tout en évitant les régimes multidisperses.

Une première remarque s'impose avant d'analyser les régimes d'écoulement observés. La modulation réalisée ici se faisant sous la forme d'un créneau d'intensité, elle ne constitue pas une sélection d'un mode d'instabilité bien défini. Une excitation sinusoïdale, par exemple en utilisant un modulateur acousto-optique, permettrait une telle sélection. Cette étude consiste donc à comparer les régimes obtenus lorsque l'excitation est intermittente, et sa durée réduite par

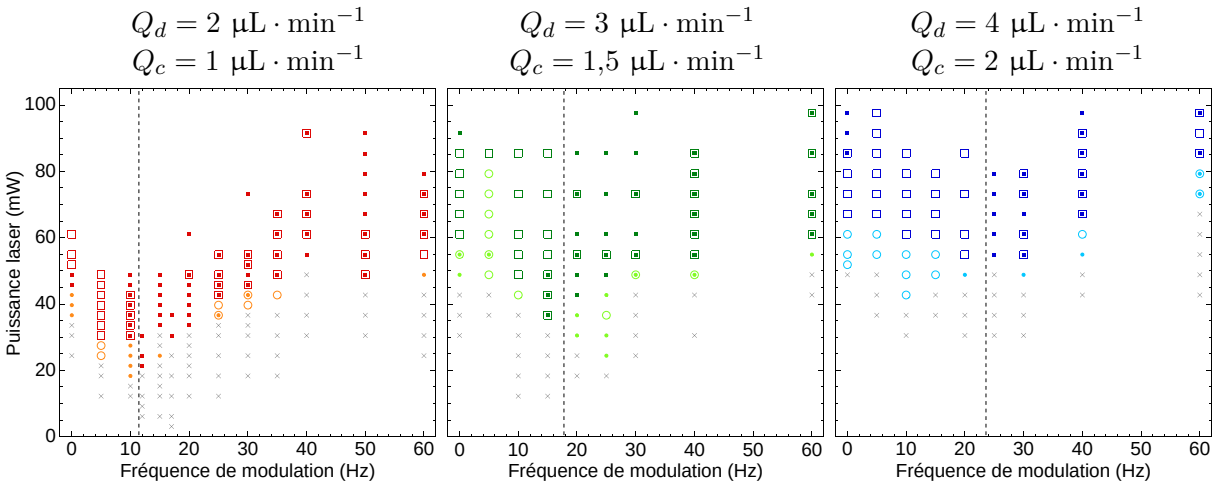

Fig. 7.24 – *Représentation des différents régimes d'écoulement dans le plan (fréquence de modulation, puissance laser), pour trois couples de débits. Les croix correspondent à un écoulement majoritairement continu, sans régime de gouttes stationnaire. Les symboles ronds correspondent aux cas où les écoulements sous forme de jet et de gouttes coexistent. Les symboles carrés correspondent à un écoulement exclusivement discontinu. Les symboles pleins sont associés aux gouttes monodisperses, les symboles ouverts aux gouttes multidisperses. La superposition de symboles ouverts et pleins signifie que des gouttes mono- et multidisperses coexistent. Les pointillés marquent approximativement la fréquence f_s où l'excitation est synchronisée avec l'advection du bourrelet.*

rapport à une excitation continue.

La figure 7.24 présente les différents régimes d'écoulement obtenus selon les caractéristiques (puissance laser, fréquence de modulation) de l'excitation, pour trois couples de débits. Ces régimes ont été définis à la section précédente dans le cas d'une excitation continue :

- La brisure du jet, épisodique, conduit à l'émission de gouttes sans distribution en taille définie (cas représenté par exemple sur le graphe du haut de la figure 7.20). Ce régime est symbolisé par des croix.
- L'écoulement est alternativement continu et discret, l'émission des gouttes est stationnaire. Les gouttes sont monodisperses (cas représenté par exemple sur le graphe du milieu de la figure 7.20). Ce régime est symbolisé par des ronds pleins.
- L'écoulement est alternativement continu et discret, l'émission des gouttes est stationnaire. Les gouttes sont multidisperses. Ce régime est symbolisé par des ronds ouverts.
- L'écoulement est toujours discret : le jet ne se reforme pas. Les gouttes sont monodisperses (cas représenté par exemple sur le graphe du bas de la figure 7.20). Ce régime est symbolisé par des carrés pleins.
- L'écoulement est toujours discret : le jet ne se reforme pas. Les gouttes sont multidisperses. Ce régime est symbolisé par des carrés ouverts.

L'excitation modulée offre des informations supplémentaires sur la transition entre les régimes d'écoulement continu et discret. L'obtention d'un régime stationnaire est favorisée à une fréquence de modulation voisine de 10 à 15 Hz, qui ne semble pas dépendre des débits à rapport fixé. La brisure permanente du jet est par ailleurs optimisée pour une fréquence f_s qui croît comme les débits : 12 Hz pour le premier couple de débits, entre 15 et 20 Hz pour le second et environ 25 Hz pour le troisième. Cette fréquence optimale correspond donc à une synchronisation spatiale de l'excitation avec la réponse du jet. Les séquences vidéo confirment qu'autour de la fréquence f_s les bourrelets créés en amont du faisceau laser sont systématiquement advectés pendant la demi-période où le laser est éteint. Le fait que la déstabilisation du jet et sa non-reformation soient optimisées pour des fréquences qui ne sont pas associées aux mêmes paramètres confirme que déstabilisation et reformation ne sont pas symétriques. Elles impliquent

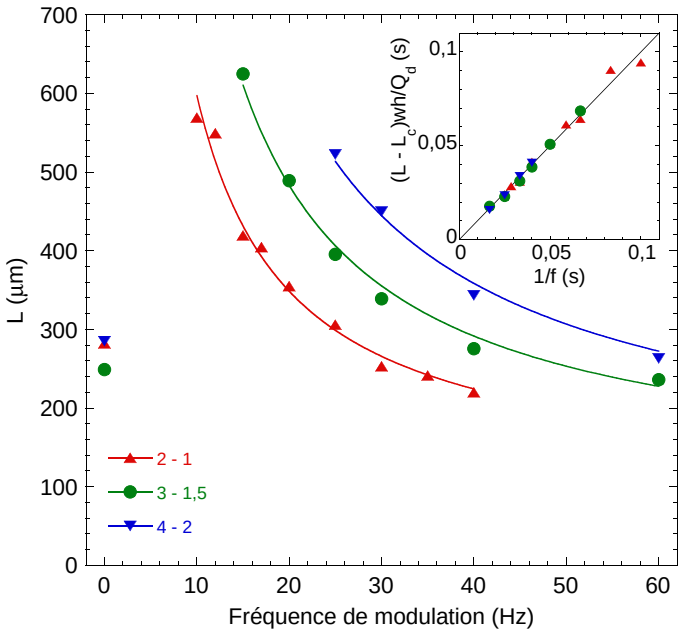

FIG. 7.25 – *Longueur des gouttes produites en fonction de la fréquence de modulation pour les trois couples de débits considérés. La ligne continue est un ajustement de la forme* (7.26)*. L'encart représente ces mêmes données, renormalisées à partir des paramètres issus de l'ajustement.*

donc des mécanismes physiques distincts.

Par ailleurs, l'observation des séquences vidéo montre que plusieurs gouttes peuvent être émises pendant une période lorsque la fréquence de modulation est inférieure à cette fréquence f_s. Des séquences à plusieurs gouttes analogues à celles observées sans modulation sont alors retrouvées. Pour ces « basses fréquences », la durée de l'excitation est suffisante pour permettre plusieurs pincements successifs. L'excitation peut donc être vue comme continue à l'échelle de l'émission d'une goutte.

Au-delà de f_s, l'excitation n'est plus synchronisée avec la réponse du jet. La puissance nécessaire à la brisure du jet s'en trouve ainsi augmentée. Plusieurs périodes de modulation successives, chacune accentuant la déformation thermocapillaire initiée par la précédente, peuvent être requises. Le nombre de périodes de modulation peut être fixe sur une durée significative, conduisant à une population de gouttes monodisperse, ou alterner d'une goutte à la suivante. Des régimes multidisperses de « haute fréquence », distincts des séquences associées à une excitation continue, sont ainsi observés. Pendant la durée d'une acquisition, les régimes mono- et multidisperses coexistent généralement. Cependant, en augmentant la puissance laser, on peut favoriser l'émission systématique d'une goutte par période de modulation. Cette adaptation de la puissance n'influe pas sur la taille des gouttes, comme on l'a observé dans le régime monodisperse (figure 7.23).

La figure 7.25 représente ainsi la taille des gouttes obtenues en forçant l'émission d'une goutte par période. La valeur à 0 Hz correspond aux gouttes monodisperses émises dans le cas d'une excitation continue. La longueur des gouttes diminue de manière contrôlée de 600 à 250 µm environ sur la gamme de fréquences considérée.

La longueur des gouttes émises est déterminée à partir de la conservation du volume entre deux brisures successives. Une longueur de coupure L_c, qui provient du fait que la longueur de la goutte produite ne peut être inférieure à sa largeur — comme on peut le constater sur les figures 7.22 et 7.23 — doit être ajoutée. Elle doit être comparable à la largeur du canal

($w \simeq 100$ µm). La conservation du volume s'écrit

$$L = \frac{Q_d}{whf} + L_c, \tag{7.26}$$

avec f la fréquence de modulation. Cette dépendance est bien retrouvée sur les données expérimentales de la figure 7.25, ici ajustées avec $L_c = 100$ µm. La vitesse $\frac{Q_d}{wh}$ est laissée en paramètre libre ; les valeurs obtenues sont respectivement 4,97, 7,66 et 10,34 mm $\cdot$ s^{-1} pour chaque couple de débits. Bien que ces valeurs soient assez éloignées — environ 25 % d'erreur — de celles attendues (respectivement 6,7, 10 et 13,3 mm $\cdot$ s^{-1}), elles suivent le même rapport que les débits, comme le montre la représentation normalisée sur l'encart de la figure. L'écart observé peut résulter de notre connaissance imprécise de la section du microcanal d'une part, et d'une erreur d'étalonnage du pousse-seringue d'autre part.

Dans le cas d'une excitation modulée, nous avons donc montré que le pincement thermocapillaire du jet constitue un moyen de produire des gouttes de taille bien contrôlée.

Dans de ce chapitre, nous avons étudié le pincement thermocapillaire d'un jet microfluidique. Ce pincement peut conduire à la rupture du jet suivant une dynamique en deux étapes : à la déformation thermocapillaire proprement dite, directement liée à l'excitation, succède un mécanisme de rupture qui en est indépendant. Ce mécanisme en deux étapes suggère une analogie avec les dispositifs usuels de génération de gouttes en microfluidique diphasique, où les contraintes exercées par le fluide externe confiné conduisent à l'instabilité et à la rupture de l'interface. Par ailleurs, l'étude des gouttes formées montre que le générateur de gouttes optofluidique se comporte comme un système dynamique non linéaire, à l'instar des autres dispositifs de génération de gouttes connus. Enfin, nous avons montré la possibilité, *via* une excitation modulée, de contrôler la taille des gouttes émises. Cette méthode constitue donc une approche possible pour l'échantillonnage à haut débit.

Conclusion

Nous avons développé au cours de cette thèse une approche optique pour manipuler sans contact des écoulements diphasiques en microcanal. Cette approche est basée sur la génération, sous l'effet d'un gradient de température créé par laser, de contraintes thermocapillaires sur l'interface. L'intérêt majeur de cette approche réside dans sa polyvalence, du fait du découplage total entre le circuit microfluidique et le champ excitateur. Elle permet ainsi d'envisager des composants fluidiques variés, reposant sur un même effet, sans microfabrication particulière.

Par ailleurs, la caractérisation de ces composants fournit des informations complémentaires permettant d'appréhender les spécificités de la configuration dans laquelle nous utilisons l'effet thermocapillaire — gradient de température petit devant la taille de l'objet considéré — par rapport à la configuration académique usuelle — gradient de température uniforme d'extension infinie.

Nous avons tout d'abord montré de façon empirique, à partir notamment de l'étude du sens des écoulements locaux, que notre approche repose sur l'effet Marangoni inverse. Cette inversion est observée uniquement en présence de tensioactifs au-delà de la CMC. Nous pensons donc qu'elle résulte d'un couplage dynamique entre la température et la distribution des molécules de tensioactif sur l'interface, bien que nous ne disposions pas à ce jour d'une caractérisation à l'appui de cette hypothèse.

L'effet thermocapillaire que nous exploitons est tel que l'interface est tirée vers le point chaud. Il conduit donc à repousser une goutte du point chaud. Le faisceau laser se comporte ainsi comme une sorte de « mur souple », dont la rigidité est pilotée par le gradient de température qu'il induit. En système confiné, cet effet permet donc de bloquer l'écoulement de gouttes, au cours de leur formation, jusqu'à des vitesses de l'ordre du $\mathrm{mm \cdot s^{-1}}$. Nous avons également montré que, malgré la localisation du chauffage, l'effet peut être décrit avec un approche de champ moyenné, analogue au cas d'un gradient de température macroscopique. Cependant, le caractère local des écoulements interfaciaux modifie l'influence du confinement par rapport à une goutte soumise à un gradient de température dont l'extension est grande devant sa longueur.

L'écriture d'un bilan des forces simplifié a permis de caractériser l'effet de blocage. Nous avons ainsi déterminé une force thermocapillaire de l'ordre de 10^{-7} N, comparable aux estimations précédemment reportées. L'ordre de grandeur des effets mécaniques obtenus par cette approche est donc comparable à celui résultant d'autres méthodes impliquant un champ externe — électro-osmose, (di)électrophorèse, effet thermocapillaire avec des résistances intégrées —, et dépasse très largement celui des effets mécaniques des forces optiques. La pertinence de cette approche en vue d'applications à la microfluidique diphasique à haut débit est ainsi confirmée.

D'un point de vue applicatif, l'effet de blocage permet de contrôler en temps réel les caractéristiques — taille des gouttes, fréquence d'émission — de l'écoulement. Cependant, le blocage thermocapillaire n'est possible que pour des gouttes suffisamment lentes. La marge d'amplification de l'effet thermocapillaire étant limitée, au niveau de l'échauffement, par l'ébullition, l'optimisation ne peut provenir que du terme reliant l'effet thermique à l'effet mécanique. Ce terme demeure largement incompris. Une étude approfondie de la physico-chimie interfaciale est donc nécessaire pour savoir si le blocage de gouttes plus rapides (au $\mathrm{cm \cdot s^{-1}}$) est envisageable ou non.

Cependant, lorsque les gouttes sont trop rapides pour être bloquées et que la géométrie du canal le permet, elles peuvent être déviées. Nous avons montré que cet effet d'aiguillage est compatible avec les vitesses d'écoulement de la microfluidique à haut débit (de l'ordre du $\mathrm{cm} \cdot \mathrm{s}^{-1}$). En outre, du fait de son origine thermique, cet effet est sélectif en fonction des propriétés absorbantes du liquide et permet donc la séparation de populations de gouttes dont les propriétés absorbantes sont distinctes.

Deux limitations apparaissent cependant, à haute cadence et à haut débit. À fort trafic, l'interaction entre gouttes se couple avec l'effet thermocapillaire, qui se produit à l'échelle de la goutte individuelle, et conduit à des réarrangements dynamiques de l'écoulement. D'autre part, à grande vitesse, un effet d'aiguillage inversé, qui demeure incompris, a été observé.

Dans l'optique de caractériser la transition entre des régimes d'écoulement sous forme de jet et sous forme de gouttes, nous avons développé un dispositif optoélectronique compact permettant la détection et la mesure de la vitesse et de la taille des gouttes. Ce dispositif est basé sur une interprétation du signal différentiel produit par deux photodiodes montées en inverse au passage d'une goutte. Nous avons caractérisé ce dispositif, et montré son efficacité jusqu'à des cadences atteignant la centaine de Hz, et avec des interfaces très peu contrastées. Nous avons ainsi pu caractériser des écoulements sur des temps très longs (une nuit), sans limitation particulière sur le nombre de gouttes. À cette échelle de temps, nous avons observé de fortes fluctuations, inattendues, des caractéristiques des gouttes lorsque l'écoulement est imposé en débit. Ce dispositif s'avère aussi particulièrement prometteur pour étudier des régimes transitoires, notamment avec des fluides très visqueux, dont le temps caractéristique de réponse aux sollicitations mécaniques peut être très grand, ou encore avec des fluides non-newtoniens.

Les contraintes Marangoni induisent aussi une déflexion de l'interface. Nous avons montré qu'à deux fluides, cette déflexion conduit soit à un gonflement, soit à un pincement, selon le contraste des viscosités et l'épaisseur des deux couches de liquide. Cet effet de pincement a été utilisé pour déstabiliser un jet dont la stabilité en l'absence de champ est assurée par le confinement. La rupture du jet peut ainsi être forcée de manière contrôlée. Nous avons montré que le mécanisme conduisant à la rupture est totalement indépendant du mécanisme de pincement thermocapillaire initial, et qu'il suit une dynamique imposée par une augmentation de la tension interfaciale. Cette évolution, visible aux échelles de temps sub-milliseconde, suggère l'importance des effets de tension interfaciale dynamique dans le comportement des interfaces soumises à une forte contrainte hydrodynamique, telle que la contrainte Marangoni. Ces effets peuvent ainsi être à l'origine, aux temps plus longs, de la résultante $\left(\frac{\partial \sigma}{\partial T}\right)_{\mathit{eff}} > 0$ observée.

La transition entre les régimes de jet et de gouttes a également été caractérisée. Nous observons de façon surprenante que les deux régimes peuvent se succéder sur des temps atteignant la minute, et ce sur une large plage d'amplitude de la perturbation imposée. Nous pensons que ce phénomène résulte en partie d'un couplage entre l'effet, à l'échelle locale, du pincement, et un effet hydrodynamique associé à l'histoire de l'écoulement dans la partie avale du canal. D'autre part, certaines amplitudes d'excitation optimisent le régime de goutte à goutte. Le rôle stabilisant du bourrelet généré en amont du point de pincement thermocapillaire peut être invoqué pour expliquer ces amplitudes privilégiées.

Enfin, nous avons caractérisé les gouttes formées. Plusieurs régimes, correspondant à des séquences d'émission des gouttes bien définies, ont été observés. Ces séquences impliquent entre 1 et 8 gouttes. Ce comportement a déjà été observé avec plusieurs dispositifs générateurs de gouttes connus, et est généralement associé à une transition entre les régimes de *jetting* et de *dripping*, eux-mêmes associés à différents modes de développement spatial de l'instabilité (convective ou absolue). En milieu confiné, une transition entre régimes dont la dynamique est plus ou moins fortement influencée par le confinement (entre *squeezing* et *dripping*) peut être invoquée. Cette interprétation en termes de degré de confinement variable apparaît vraisemblable dans notre cas

compte tenu de la rétroaction entre pincement et gonflement.

La modulation du faisceau laser permet d'optimiser l'excitation, en la synchronisant avec l'advection du bourrelet. On peut ainsi former des gouttes monodisperses de taille contrôlée, en s'affranchissant des régimes d'émission séquencée, ce qui ouvre la voie à un échantillonneur à haut débit. Les vitesses d'écoulement étant de l'ordre du $\mathrm{cm} \cdot \mathrm{s}^{-1}$, cette approche semble pertinente d'un point de vue applicatif.

Outre les développements particuliers discutés ci-dessus, les principales perspectives sur lesquelles ouvre ce travail sont les suivantes :

- La physico-chimie interfaciale demeure incomprise. La redistribution dynamique des molécules de tensioactif à l'interface pourrait être étudiée, au repos et sous écoulement, notamment par ellipsométrie. L'étude, par diffusion de la lumière, du phénomène de *tip streaming* observé lors du blocage pourrait apporter des informations sur la dynamique de migration du tensioactif du volume vers l'interface. Ces études nécessitent cependant la mise en place d'outils de caractérisation *in situ*.
- Le couplage entre l'effet thermocapillaire, à l'échelle locale de la goutte individuelle, et les effets hydrodynamiques collectifs, à l'échelle d'une population de gouttes ou d'un volume de fluide dans le canal, engendre des effets très divers. Cette diversité laisse entrevoir une physique très riche.
- D'un point de vue applicatif, les composants à haut débit — aiguillage, échantillonneur — sont susceptibles de développements ultérieurs. L'emploi d'un colorant, éventuellement pénalisant dans le cadre d'une application à la chimie, n'est pas indispensable en optimisant la longueur d'onde de travail aux fluides utilisés. Dans le cas de l'eau par exemple, la bande d'absorption autour de $\lambda \simeq 1{,}5$ µm correspond à la longueur d'onde d'émission des lasers de télécommunications. Ces composants pourraient être combinés, et couplés à la détection et à la mesure des gouttes par le dispositif de caractérisation présenté au chapitre 6, pour envisager une approche tout-optique et automatisée du laboratoire sur puce.
- Enfin, le dispositif de caractérisation des gouttes doit être développé et fiabilisé aux plus hautes cadences (au-delà du kHz) pour étendre son domaine d'applications.

Annexe A

Fabrication de microcanaux par lithographie « souple »

Le procédé de lithographie « souple » *(soft lithography),* l'un des plus utilisés au sein de la communauté microfluidique, a été développé par l'équipe de Whitesides à Harvard [165]. La fabrication des microcanaux comporte deux étapes : la réalisation d'un moule par photolithographie, et l'impression de ce moule dans une matrice élastomère qui servira de base au microcanal proprement dit.

Parmi les méthodes alternatives, citons la gravure chimique, utilisée pour graver des microcanaux dans du verre. Cette méthode sort du cadre de ces travaux et ne sera donc pas décrite ici.

A.1 Photolithographie

La photolithographie est une technique inspirée de la microélectronique basée sur l'irradiation sélective d'une résine, afin de reproduire un motif prédéterminé. La résine peut être dégradée, dans le cas d'une résine dite positive, ou amorcée, elle est alors dite négative ; l'irradiation UV conduit alors à l'obtention de structures en creux ou en relief. La résine utilisée dans notre cas (SU-8 2050, Microchem) est une résine négative, contenant un époxy (le SU8) et un agent réticulant photoactif.

Les différentes étapes du procédé sont représentées sur la figure A.1. Un substrat, généralement une tranche *(wafer)* de silicium (étape 1), est préparé afin d'améliorer le mouillage de la résine. Cette préparation comprend successivement :

- une déshydratation thermique (chauffage à 200 °C pendant 20 min) ;
- une silanisation par dépôt en phase gazeuse d'hexaméthyldisilazane, cette molécule est adsorbée spontanément sur la surface de silicium ;
- une seconde étape de chauffage (2 min à 120 °C) pour former des liaisons chimiques entre les molécules de silane et la surface.

La résine est ensuite déposée sur le substrat (étape 2), et étalée de façon homogène par enduction centrifuge *(spin coating)* sur un plateau tournant à grande vitesse (étape 3). L'épaisseur dépend de la vitesse de rotation. Le solvant de la résine est ensuite évaporé par chauffage (65 puis 95 °C), conduisant à son durcissement. La résine est ensuite insolée sélectivement dans le proche UV à 365 nm, un masque permettant de définir les zones à irradier (étape 4). Ces dernières sont ensuite réticulées par chauffage (étape 5), et le motif est développé (étape 6) par dissolution de la résine non réticulée à l'aide d'un solvant adapté (le propylène glycol monométhyle éther acétate). Un rinçage à l'isopropanol et un séchage à l'azote conduisent finalement aux motifs en relief au niveau des zones transparentes du masque.

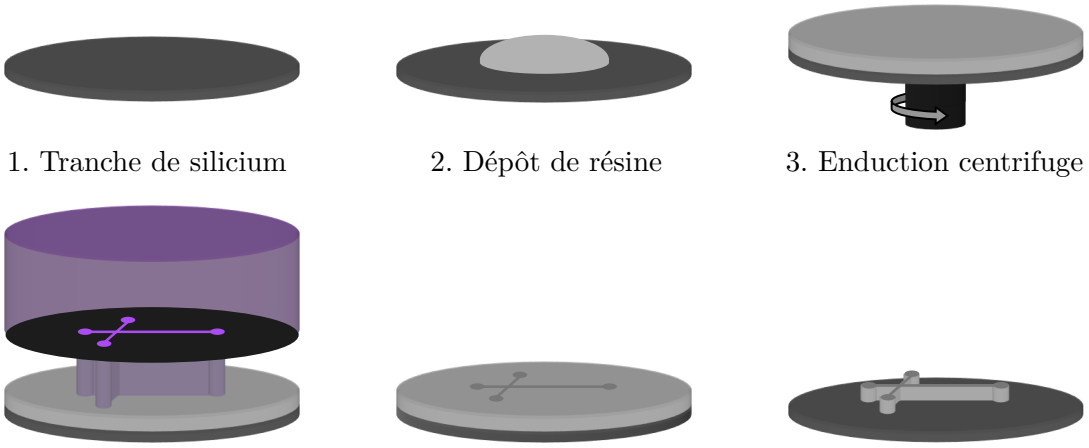

FIG. A.1 – *Principales étapes de la définition des moules par photolithographie.*

A.2 Impression

Le motif obtenu après l'étape de photolithographie constitue un négatif à imprimer dans une matrice d'élastomère. Ce procédé est représenté sur la figure A.2.

L'élastomère utilisé, le polydiméthylsiloxane (PDMS, Dow Corning, Syglard 184) est mélangé à un agent réticulant en proportion 5 : 1 à 10 : 1 en masse — une plus grande proportion de réticulant conduisant à une plus grande rigidité. Le mélange est mis à dégazer dans une cloche à vide, puis versé sur les motifs obtenus par lithographie (étapes 1 et 2). Les bulles d'air susceptibles d'être apparues lors du dépôt sont évacuées sous cloche à vide. Un chauffage à 65 °C à l'étuve conduit à la réticulation du PDMS. L'élastomère réticulé est ensuite découpé avec une lame de cutter (étape 3) et les trous de connectique percés à l'emporte-pièce (étape 4). Ces deux opérations se déroulent sous hotte à flux laminaire pour éviter les pollutions. Le PDMS et la lame de verre (SuperFrost) destinée à servir de support du futur microcanal sont ensuite oxydés sous plasma d'ozone (étape 5), générant des radicaux très réactifs sur les deux surfaces. Ces radicaux conduisent à un collage irréversible des deux surfaces lorsqu'elles sont mises en contact (étape 6). Les canaux ainsi formés présentent ainsi trois parois de PDMS et une de verre.

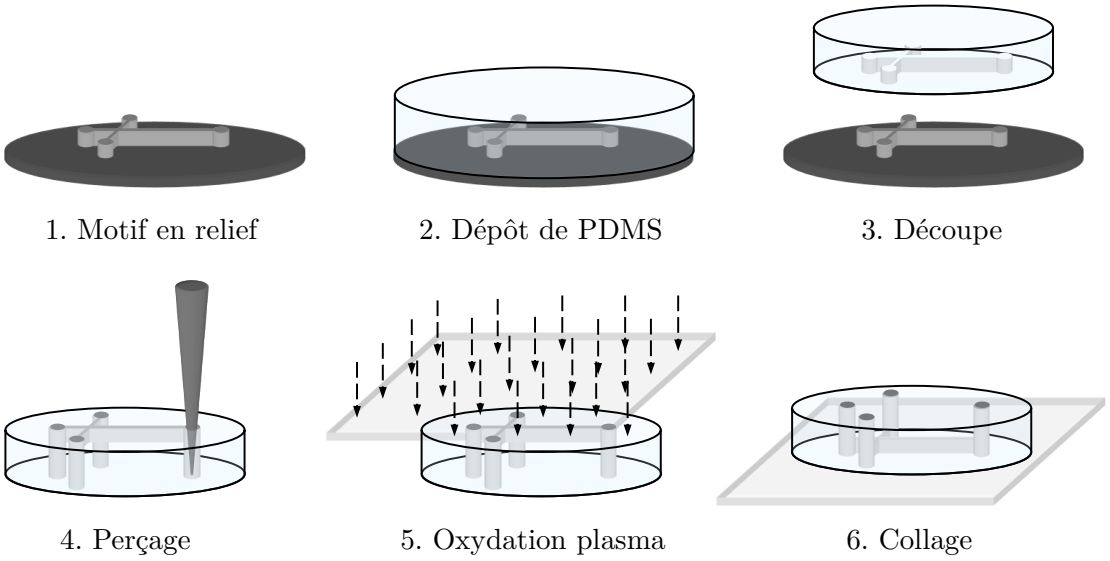

FIG. A.2 – *Principales étapes de la réalisation de microcanaux par impression sur du PDMS.*

Annexe B

Détermination du rendement quantique de fluorescence

L'intensité lumineuse absorbée par une épaisseur H de liquide absorbant est donnée par la relation (3.1),

$$I_{abs}(H) = \left(1 - \mathrm{e}^{-aH}\right) I_0 \tag{B.1}$$

(les notations sont celles définies à la section 3.1.2), ce qui peut s'écrire

$$I_{abs}(H) \simeq aH I_0 \, \mathrm{e}^{-aH} \tag{B.2}$$

dans le cas d'une faible absorption ($aH \ll 1$).

D'autre part, l'intensité de fluorescence détectée en H s'écrit

$$I_{fluo}(H) = \chi I_{abs}(H). \tag{B.3}$$

Cette intensité détectée dépend de l'absorbance de la solution, donc de sa concentration et de son épaisseur, elle n'est donc pas caractéristique de la substance considérée. Le signal de fluorescence inclut les photons émis dans toutes les directions et à toutes les longueurs d'onde. Ce processus étant isotrope, le signal collecté sur un angle solide donné peut être aisément extrapolé à l'espace entier, et doit par ailleurs être intégré sur tout le spectre.

Soient une substance de référence, de rendement quantique $\chi_{réf}$ connu, et u la substance que l'on cherche à caractériser. Les signaux de fluorescence mesurés s'expriment respectivement

$$\begin{aligned} I^{réf}_{fluo} &= \chi_{réf} \, a_{réf} \, H I_0 \, \mathrm{e}^{-a_{réf} H} \\ I^{u}_{fluo} &= \chi_u \, a_u \, H I_0 \, \mathrm{e}^{-a_u H}, \end{aligned} \tag{B.4}$$

et leur rapport s'écrit

$$\frac{I^{réf}_{fluo}}{I^{u}_{fluo}} = \frac{\chi_{réf} \, a_{réf} \, \mathrm{e}^{-a_{réf} H}}{\chi_u \, a_u \, \mathrm{e}^{-a_u H}}. \tag{B.5}$$

La mesure des absorptions et des intensités de fluorescence, $a_{réf}$ et $I^{réf}_{fluo}$ d'une part, a_u et I^{u}_{fluo} d'autre part, permet d'établir une intensité de fluorescence calibrée pour chacune des deux substances :

$$\begin{aligned} \left(I^{réf}_{fluo}\right)_{cal} &= \frac{I^{réf}_{fluo}}{a_{réf} \, \mathrm{e}^{-a_{réf} H}} \\ \left(I^{u}_{fluo}\right)_{cal} &= \frac{I^{u}_{fluo}}{a_u \, \mathrm{e}^{-a_u H}}. \end{aligned} \tag{B.6}$$

Cette écriture sous la forme d'une « intensité de fluorescence par unité d'absorption » est ainsi caractéristique de l'espèce considérée. D'après (B.5), le rendement quantique recherché s'obtient alors simplement à partir du rapport des deux signaux ainsi calibrés,

$$\chi_u = \frac{\left(I^u_{fluo}\right)_{cal}}{\left(I^{réf}_{fluo}\right)_{cal}} \chi_{réf}, \tag{B.7}$$

ne faisant intervenir que des grandeurs caractéristiques des substances considérées.

Cette dernière relation n'est valable que si la substance inconnue et la référence ont le même indice de réfraction. Aux faibles concentrations, l'indice de la solution est celui du solvant, cette relation conserve donc sa validité si les deux mesures sont faites avec des solutions dissoutes dans le même solvant. Dans le cas contraire, elle doit être corrigée en faisant intervenir les indices des solvants correspondants :

$$\chi_u = \frac{\left(I^u_{fluo}\right)_{cal}}{\left(I^{réf}_{fluo}\right)_{cal}} \left(\frac{n_u}{n_{réf}}\right)^2 \chi_{réf}. \tag{B.8}$$

Dans notre cas, la substance de référence est la rhodamine 6G R 590 dans l'éthanol, excitée à 530 nm, dont le rendement quantique est $\chi_{réf} = 95$ %.

Annexe C

Conditions aux limites thermiques

Le calcul d'élévation de température traité au chapitre 4 considère une couche absorbante insérée entre deux couches transparentes, l'une étant plus conductrice, l'autre moins (figure C.1 (a)). Par ailleurs, le calcul considéré au chapitre 7 ignore tout transfert thermique aux parois. L'objet de la présente annexe est de discuter l'influence des transferts thermiques aux parois sur la distribution de température. Les propriétés thermiques des différents matériaux considérés sont rappelées dans le tableau C.1.

TAB. C.1 – *Conductivités* (Λ) *et diffusivités* (D_T) *thermiques des différents matériaux considérés.*

	Verre	Eau	Hexadécane	PDMS	
Λ	1,38	0,6	0,14	0,15	$\mathrm{W \cdot K^{-1} \cdot m^{-1}}$
D_T	8,5	1,4	0,9	1,4	$10^{-7}\ \mathrm{m^2 \cdot s^{-1}}$

C.1 Couche semi-infinie absorbant en surface

Simplifions le problème sur la base des approximations suivantes :
- les conductivités du verre et de l'eau sont identiques (elles diffèrent en réalité d'un facteur 2) ;
- la conductivité du PDMS est très petite devant celle de l'eau (elle est 4 fois plus petite).

Cela revient à considérer une couche d'eau semi-infinie, chauffée uniquement en surface. La géométrie correspondante est représentée sur la figure C.1 (b). Ces simplifications diminuent les

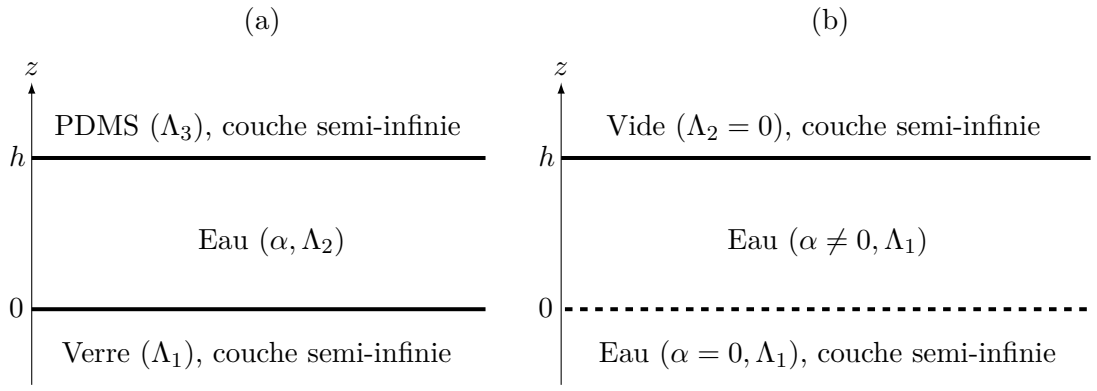

FIG. C.1 – *Représentations schématiques* (a) *du problème thermique considéré au chapitre* 4 *et* (b) *d'une couche d'eau semi-infinie absorbant en surface.*

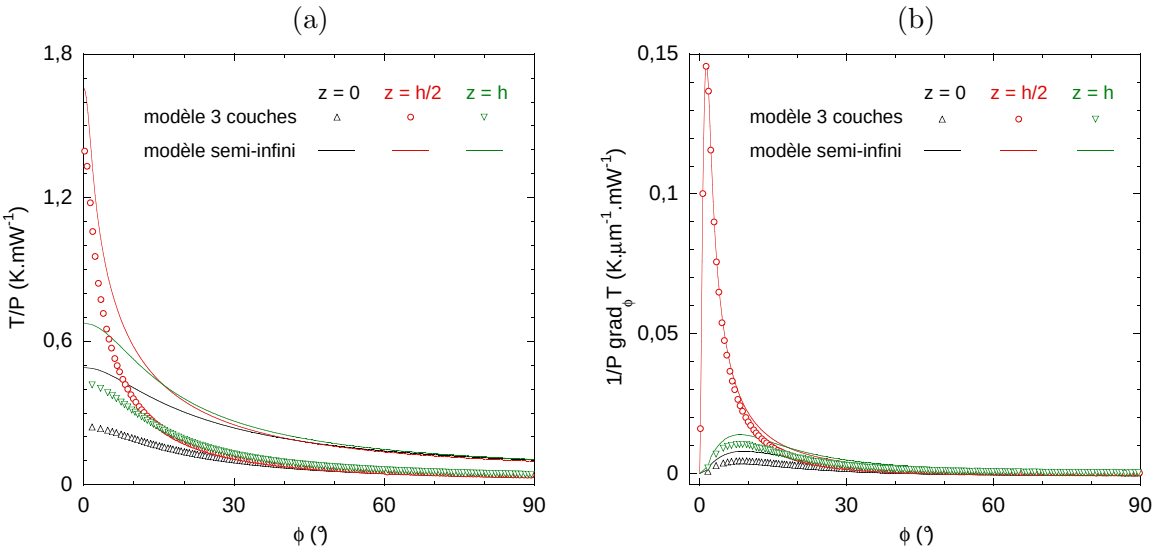

FIG. C.2 – *Comparaison entre les résultats issus du calcul sur un modèle à trois couches (symboles) et sur un modèle semi-infini (trait continu), pour trois cotes z différentes correspondant au plan médian et aux limites de la zone absorbante. Le rayon au col est fixé à $\omega_0 = 2{,}85$ µm.* (a) *Distribution de température sur l'interface,* (b) *gradient de température azimutal. Les données sont normalisées par la puissance laser.*

transferts thermiques entre la couche échauffée et les couches environnantes. Elles doivent donc conduire à une température plus élevée dans la couche absorbante.

Les hypothèses de calcul considérées à la section 4.2.2 (approximation diffusive, stationnarité, faible absorption) sont conservées, ainsi que les conditions aux limites (4.10) et (4.11), cette dernière devenant une condition de flux nul en $z = h$.

La résolution de l'équation de la chaleur (4.9) dans l'espace de Fourier-Bessel reste valable. L'approximation choisie pour les conductivités conduit à

$$\begin{aligned} \mathcal{F}_+(k) &= \mathrm{e}^{-2kh} \\ \mathcal{F}_-(k) &= 1 \end{aligned} \tag{C.1}$$

avec $\mathcal{F}_\pm(k)$ définie par (4.20). On en déduit le champ de température dans la couche d'eau chauffée :

$$T(r,z) = \frac{\alpha P}{2\pi\Lambda_1} \int_0^\infty \frac{\mathrm{e}^{-\frac{k^2\omega_0^2}{8}}}{k} \left(1 - \frac{1}{2}\,\mathrm{e}^{-2kh}\mathrm{e}^{kz} - \frac{1}{2}\,\mathrm{e}^{-kz}\right) \mathcal{J}_0(kr)\,\mathrm{d}k. \tag{C.2}$$

La distribution et le gradient azimutal de température dans la couche échauffée déterminés après intégration numérique sont représentés sur la figure C.2. Conformément à ce que les hypothèses de moindres flux permettaient de supposer, la température (figure C.2 (a)) est significativement plus élevée dans le cas du modèle semi-infini, aussi bien au plan médian qu'aux limites de la couche absorbante. La distribution de température présente par ailleurs une forme plutôt similaire quel que soit le modèle considéré. Ainsi, le gradient de température (figure C.2 (b)) calculé avec les deux modèles est peu différent. Les différences d'amplitude apparaissent plus significatives aux parois qu'au voisinage du plan médian, et ont ainsi un impact limité sur le gradient de température moyen sur le ménisque. Le tableau C.2 répertorie les valeurs du gradient de température moyen sur l'épaisseur h du fluide, calculées avec les deux modèles pour différents rayons au col. L'écart relatif entre les valeurs correspondant à chaque modèle est toujours de l'ordre de 10 %.

Tab. C.2 – *Gradient de température moyen sur l'épaisseur h d'un microcanal, normalisé par la puissance laser. La largeur w_d des microcanaux considérés est* 200 µm *et* 100 µm *respectivement. Comparaison entre les deux modèles pour différents rayons au col.*

	ω_0	1,42	2,85	5,52	9,61	µm
$h = 30$ µm	3 couches	3,03	2,89	2,58	2,01	10^{-3} K · µm^{-1} · mW^{-1}
	semi-infini	3,29	3,15	2,83	2,23	
$h = 50$ µm	3 couches	6,09	5,97	5,69	5,13	
	semi-infini	6,66	6,54	6,25	5,67	

C.2 Film isolant séparant deux couches conductrices

La couche d'eau est séparée des parois du microcanal par un film d'hexadécane, dont l'épaisseur δ est typiquement submicrométrique (figure C.3 (a)). Ce film a une conductivité très proche de celle du PDMS, plus petite que celles de l'eau et du verre (tableau C.1). Il doit donc conduire à une réduction des transferts thermiques entre l'eau et la paroi de verre, son influence au niveau de la paroi de PDMS étant par ailleurs négligeable.

On cherche donc ici à estimer l'erreur faite en ne tenant pas compte du film de mouillage séparant l'eau de la paroi de verre dans le calcul de la température de l'eau. Pour cela, on considère la géométrie représentée sur la figure C.3 (b), l'approximation d'une couche absorbante semi-infinie provenant du fait que son épaisseur est grande devant celle du film : $\delta \ll h$.

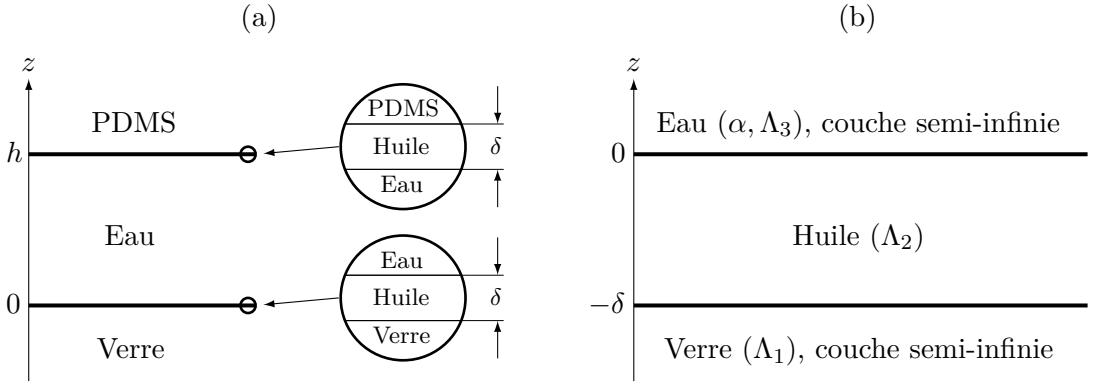

Fig. C.3 – (a) *Représentation schématique du problème thermique considéré au chapitre* 4. *Un zoom au voisinage des parois fait apparaître les films de mouillage.* (b) *Représentation schématique du modèle proposé pour décrire le champ de température près des parois en tenant compte des films de mouillage.*

Le problème est posé et résolu selon le même raisonnement que précédemment. La température de l'eau s'écrit, dans l'espace de Fourier-Bessel,

$$\tilde{T}_3(k,z) = B_3(k)\,\mathrm{e}^{-kz} + \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_3}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}, \tag{C.3}$$

avec

$$B_3(k) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_3}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}\frac{\left(1-\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\mathrm{e}^{-2k\delta} - \left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)}{\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\left(1+\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right) - \left(1-\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)\mathrm{e}^{-2k\delta}}. \tag{C.4}$$

Un développement à l'ordre 1 en $k\delta$ conduit à

$$\begin{aligned} B_3(k) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_3}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}&\frac{2\Lambda_1}{\left(1-\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right) - \left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\left(1+\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)} \\ &\times\left(\frac{1}{\Lambda_2} + \left(\frac{1}{\Lambda_1} - \frac{1}{\Lambda_2} - \frac{\left(1-\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\right)\left(1-\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2}\right)}{\Lambda_1+\Lambda_3}\right)k\delta\right) + \mathcal{O}\left(k^2\delta^2\right). \end{aligned} \tag{C.5}$$

Remarquant que $\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2} \simeq 10$ et $\frac{\Lambda_3}{\Lambda_2} \simeq 4$, on peut écrire

$$\tilde{T}_3(k,z) \simeq \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_3}\frac{\tilde{G}(k)}{k^2}\left(1-\frac{5}{7}\,\mathrm{e}^{-kz}+\frac{15}{7}k\delta\,\mathrm{e}^{-kz}\right). \tag{C.6}$$

L'erreur faite en ne tenant pas compte du film de mouillage, qui se déduit de l'expression précédente par soustraction de sa valeur en $\delta = 0$, est donc

$$T_{3_\delta}(r,z) \simeq \frac{\alpha P}{2\pi\Lambda_3}\int_0^\infty \frac{15}{7}\delta\,\exp\left(-\frac{k^2\omega_0^2}{8}-kz\right)\mathcal{J}_0(kr)\,\mathrm{d}k. \tag{C.7}$$

Sur l'axe du faisceau ($r = 0$), on obtient pour $z \geqslant 0$

$$T_{3_\delta}(0,z) \simeq \frac{15}{14}\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{\alpha P}{\Lambda_3}\frac{\delta}{\omega_0}\exp\left(\frac{2z^2}{\omega_0^2}\right)\mathrm{erfc}\left(\sqrt{2}\frac{z}{\omega_0}\right) \tag{C.8}$$

avec $\mathrm{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_x^\infty \mathrm{e}^{-t^2}\mathrm{d}t$ la fonction erreur complémentaire.

La correction $T_{3_\delta}(0,z)$ est tracée sur la figure C.4 avec la température calculée au centre du faisceau avec le modèle à trois couches (avec $h = 30$ µm), pour $\omega_0 = 2{,}85$ µm et $\delta = \frac{\omega_0}{10}$. On voit que l'erreur faite en négligeant l'influence des films est significative au voisinage de la paroi de verre mais s'atténue rapidement au bout de quelques µm.

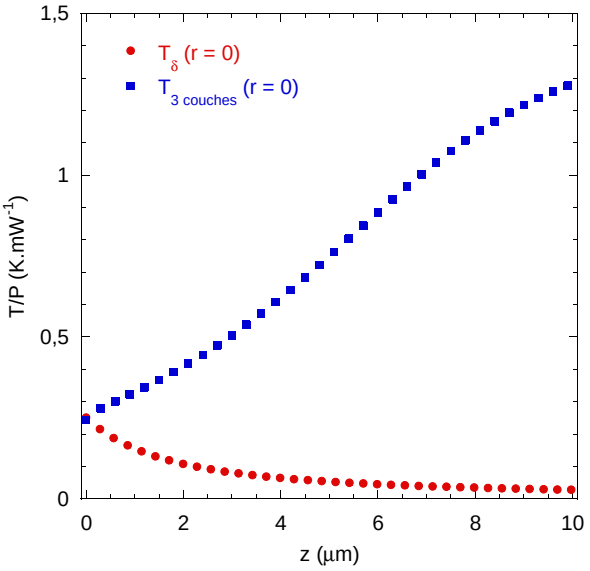

FIG. C.4 – *Comparaison entre la température sur l'axe du faisceau laser calculée avec le modèle à trois couches et la correction due aux films d'huile.*

C.3 Fuites thermiques à travers la paroi de verre

La dynamique thermique calculée au chapitre 7 (section 7.2.3) suppose que un milieu échauffé semi-infini en contact de vide. Dans notre cas, la couche d'eau échauffée est située entre plusieurs milieux conducteurs, ce qui implique des transferts thermiques qui n'ont pas été considérés. Nous cherchons ici à évaluer l'erreur faite sur la dynamique au temps courts lorsque ces transferts sont ignorés. Pour cela, on considère deux milieux conducteurs 1 et 2, séparés par une interface plane en $z = 0$. Le milieu absorbant est le milieu 2, situé en $z > 0$.

On s'intéresse à la température au voisinage de l'interface. On considère donc les deux milieux semi-infinis, comme dans le calcul traité à la section 7.2.3 ; les hypothèses de transfert diffusif et de faible absorption sont également conservées.

L'équation de la chaleur dans l'espace de Fourier-Bessel s'écrit, dans les deux milieux,

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2}-k^2\right)\tilde{T}_1 &= \frac{1}{D_{T_1}}\frac{\partial \tilde{T}_1}{\partial t}\\ \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2}-k^2\right)\tilde{T}_2+\frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\tilde{G}(k) &= \frac{1}{D_{T_2}}\frac{\partial \tilde{T}_2}{\partial t}.\end{aligned} \tag{C.9}$$

On impose par ailleurs pour conditions aux limites à l'interface la continuité de la température

$$\tilde{T}_1\left(k,z=0,t\right)=\tilde{T}_2\left(k,z=0,t\right) \tag{C.10}$$

et celle des flux de chaleur

$$\Lambda_1\left(\frac{\partial \tilde{T}_1}{\partial z}\right)_{z=0}=\Lambda_2\left(\frac{\partial \tilde{T}_2}{\partial z}\right)_{z=0}, \tag{C.11}$$

et la condition initiale

$$\tilde{T}_1\left(k,z,t=0\right)=\tilde{T}_2\left(k,z,t=0\right)=0. \tag{C.12}$$

La résolution temporelle de l'équation de la chaleur se fait en utilisant la transformée de Laplace. La transformée $\check{T}_i\left(k,z,s\right)$ de $\tilde{T}_i\left(k,z,t\right)$ s'écrit

$$\check{T}_i\left(k,z,s\right)=\int_0^\infty \tilde{T}_i\left(k,z,t\right)\mathrm{e}^{-st}\,\mathrm{d}t \tag{C.13}$$

et on a par ailleurs [170]

$$\int_0^\infty \frac{\partial \tilde{T}_i}{\partial t}\mathrm{e}^{-st}\,\mathrm{d}t = s\check{T}_i\left(k,z,s\right)-\tilde{T}_i\left(k,z,t=0\right). \tag{C.14}$$

L'équation de la chaleur s'écrit donc finalement, dans l'espace de Laplace-Fourier-Bessel,

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2}-k^2\right)\check{T}_1 &= \frac{s}{D_{T_1}}\check{T}_1\\ \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2}-k^2\right)\check{T}_2+\frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2 s}\tilde{G}(k) &= \frac{s}{D_{T_2}}\check{T}_2.\end{aligned} \tag{C.15}$$

Ses solutions s'écrivent

$$\begin{aligned}\check{T}_1\left(k,z,s\right) &= B_1(k,s)\exp\left(\sqrt{\frac{D_{T_1}k^2+s}{D_{T_2}}}\,z\right)\\ \check{T}_2\left(k,z,s\right) &= A_2(k,s)\exp\left(-\sqrt{\frac{D_{T_2}k^2+s}{D_{T_2}}}\,z\right)+\frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\tilde{G}(k)\frac{D_{T_2}}{s\left(D_{T_2}k^2+s\right)},\end{aligned} \tag{C.16}$$

où les termes

$$\begin{aligned}B_1(k,s) &= \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\tilde{G}(k)\frac{D_{T_2}}{s\left(D_{T_2}k^2+s\right)}\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\sqrt{\frac{D_{T_1}k^2+s}{D_{T_2}k^2+s}}\right)^{-1}\\ A_2(k,s) &= \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\tilde{G}(k)\frac{D_{T_2}}{s\left(D_{T_2}k^2+s\right)}\left(\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\sqrt{\frac{D_{T_1}k^2+s}{D_{T_2}k^2+s}}\right)^{-1}-1\right)\end{aligned} \tag{C.17}$$

sont déterminés à partir des conditions aux limites.

En $z=0$, la température s'écrit ainsi

$$\check{T}\left(k,z=0,s\right)=\frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\tilde{G}(k)\frac{D_{T_2}}{s\left(D_{T_2}k^2+s\right)}\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\sqrt{\frac{D_{T_1}k^2+s}{D_{T_2}k^2+s}}\right)^{-1}. \tag{C.18}$$

Le cas d'un environnement isolant correspond à $\Lambda_1 = 0$, soit

$$\check{T}_{\Lambda_1=0}(k, z=0, s) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\frac{\alpha}{\Lambda_2}\tilde{G}(k)\frac{D_{T_2}}{s\left(D_{T_2}k^2+s\right)}. \tag{C.19}$$

Ainsi, la solution générale diffère de la solution pour $\Lambda_1 = 0$ d'un facteur $\left(1+\frac{\Lambda_1}{\Lambda_2}\sqrt{\frac{D_{T_1}k^2+s}{D_{T_2}k^2+s}}\right)^{-1}$. Aux temps courts, soit pour $s \gg D_T k^2$, le terme sous la racine carrée tend vers 1. Le rapport des deux solutions tend alors vers un rapport constant :

$$\frac{\check{T}(k, z=0, s\to\infty)}{\check{T}_{\Lambda_1=0}(k, z=0, s\to\infty)} \to \frac{\Lambda_2}{\Lambda_2+\Lambda_1} \simeq 0{,}3. \tag{C.20}$$

Aux temps courts, la conductivité du milieu environnant diminue l'amplitude de l'échauffement mais ne modifie pas la dynamique thermique. Bien que ce calcul ne tienne pas compte de l'effet du balayage considéré au chapitre 7, il permet de supposer que l'écart au modèle de Sanders [235] est essentiellement lié à un facteur d'amplitude et non à un comportement dynamique de l'échauffement.

Annexe D

Propriétés optiques d'une solution de colorant alimentaire E122

Afin de généraliser les comportements observés avec l'uranine, nous avons utilisé un colorant alimentaire issu de la grande distribution. Ce colorant, l'azorubine ou carmoisine, désigné par le code E122, est commercialisé par Vahiné sous la forme d'une solution aqueuse de concentration inconnue. Cette solution présente une couleur rouge vif, et semble ainsi de prime abord adaptée à une excitation dans le vert.

Le spectre d'absorption de la solution, représenté sur la figure D.1 (a), présente un pic autour de 515 nm, confirmant son adéquation avec notre longueur d'onde de travail. La mesure du coefficient d'extinction molaire du colorant étant impossible faute d'en connaître la concentration, on cherche à obtenir une solution dont l'absorbance est la même que celle de la solution d'uranine à 0,1 % à la longueur d'onde du laser. Le coefficient d'absorption de la solution de E122 utilisée est ainsi fixé à $a = 3{,}877\ \text{mm}^{-1}$.

Par ailleurs, le spectre de fluorescence est représenté sur la figure D.1 (b) pour une excitation à 515 nm. L'émission de fluorescence est répartie entre 550 et 800 nm. Le pic à 515 nm correspond à la diffusion du faisceau excitateur. La procédure décrite à l'annexe B permet de déterminer le rendement quantique de fluorescence : $\chi = 2{,}3 \times 10^{-4}$. Ce colorant est donc très peu fluorescent.

La valeur de l'absorption qui en résulte, calculée à partir de (3.4), est

$$\alpha = 3{,}527\ \text{mm}^{-1}. \tag{D.1}$$

Cette valeur mesurée doit toutefois être discutée. En effet, dans les expériences de blocage thermocapillaire, le seuil de blocage comme l'ébullition sont constatés à des intensités laser trois fois plus grandes qu'avec l'uranine, dont l'absorption est moitié moindre. L'effet thermique réel

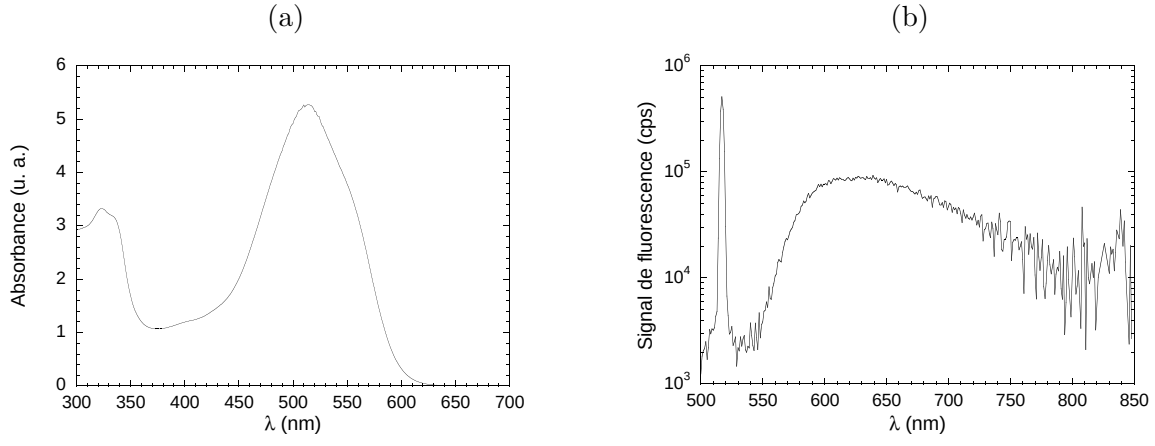

FIG. D.1 – *Spectres* (a) *d'absorption et* (b) *de fluorescence de la solution de colorant alimentaire.*

est donc environ 6 fois plus faible que ce que cette valeur de l'absorption laisserait attendre. Cela pourrait résulter d'un effet de transparence induite, qui se produit sous forte excitation, mais demeure indécelable lors d'une mesure conventionnelle de spectre d'absorption, réalisée à très faible intensité.

La valeur très petite du rendement quantique de fluorescence, associée à une absorption maximale dans notre gamme spectrale de travail, fait de ce colorant un candidat *a priori* idéal pour un chauffage laser, abstraction faite du possible effet de transparence induite discuté ci-dessus. Deux raisons, l'une d'ordre pratique, l'autre plus fondamentale, nous ont pourtant conduit à ne pas généraliser son usage. D'une part, l'absence de fluorescence empêche de visualiser le faisceau laser lorsqu'il traverse la phase aqueuse, compliquant les réglages. D'autre part, nous ignorons la composition exacte de la solution, et par là son incidence sur le système expérimental considéré. En particulier, la solution diluée de colorant s'avère moins mouillante sur le verre que la solution d'uranine, laissant supposer la présence d'agents tensioactifs. Cette constatation faite lors de la préparation des solutions ne semble pas, d'un point de vue qualitatif, prêter à conséquence dans les expériences, mais limite la pertinence des comparaisons.

Bibliographie

[1] G. M. Whitesides. The origins and the future of microfluidics. *Nature* 442, 368-373, 2006.

[2] D. Janasek, J. Franzke et A. Manz. Scaling and the design of miniaturized chemical-analysis systems. *Nature* 442, 374-380, 2006.

[3] P. Tabeling. *Introduction à la microfluidique.* Belin, Paris, 2003.

[4] T. M. Squires et S. R. Quake. Microfluidics: fluid physics at the nanoliter scale. *Rev. Mod. Phys.* 77, 977-1026, 2005.

[5] D. R. Reyes, D. Iossifidis, P.-A. Auroux et A. Manz. Micro Total Analysis Systems. 1. Introduction, theory, and technology. *Anal. Chem.* 74, 2623-2636, 2002.

[6] P.-A. Auroux, D. Iossifidis, D. R. Reyes et A. Manz. Micro Total Analysis Systems. 2. Analytical standard operations and applications. *Anal. Chem.* 74, 2637-2652, 2002.

[7] P. S. Dittrich, K. Tachikawa et A. Manz. Micro Total Analysis Systems. Latest advancements and trends. *Anal. Chem.* 78, 3887-3908, 2006.

[8] A. J. deMello. Control and detection of chemical reactions in microfluidic systems. *Nature* 442, 394-402, 2006.

[9] H. Song, D. L. Chen et R. F. Ismagilov. Reactions in droplets in microfluidic channels. *Angew. Chem. Int. Ed.* 45, 7336-7356, 2006.

[10] A. Günther et K. F. Jensen. Multiphase microfluidics : from flow characteristics to chemical and materials synthesis. *Lab Chip* 6, 1487-1503, 2006.

[11] G. F. Christopher et S. L. Anna. Microfluidic methods for generating continuous droplet streams. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 40, R319-R336, 2007.

[12] J. Bibette, F. Leal Calderon et P. Poulin. Emulsions: basic principles. *Rep. Prog. Phys.* 62, 969-1033, 1999.

[13] P.-G. de Gennes, F. Brochart-Wyart et D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes.* Belin, Paris, 2002.

[14] C. Cramer, P. Fischer et E. J. Windhab. Drop formation in a co-flowing ambient fluid. *Chem. Eng. Sci.* 59, 3045-3058, 2004.

[15] C. Clanet et J. C. Lasheras. Transition from dripping to jetting. *J. Fluid Mech.* 383, 307-326, 1999.

[16] P. B. Umbanhowar, V. Prasad et D. A. Weitz. Monodisperse emulsion generation *via* drop break off in a coflowing stream. *Langmuir* 16, 347-351, 2000.

[17] T. Thorsen, R. W. Roberts, F. H. Arnold et S. R. Quake. Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Phys. Rev. Lett.* 86, 4163-4166, 2001.

[18] J. Husny et J. J. Cooper-White. The effect of elasticity on drop creation in T-shaped microchannels. *J. Non-Newton. Fluid Mech.* 137, 121-136, 2006.

[19] J. H. Xu, G. S. Luo, G. G. Chen et J. D. Wang. Experimental and theoretical approaches on droplet formation from a micrometer screen hole. *J. Membr. Sci.* 266, 121-131, 2005.

[20] R. F. MEYER et J. C. CROCKER. Universal dripping and jetting in a transverse shear flow. *Phys. Rev. Lett.* 102, 194501, 2009.

[21] P. GARSTECKI, M. J. FUERSTMAN, H. A. STONE et G. M. WHITESIDES. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction—Scaling and mechanism of break-up. *Lab Chip* 6, 437-446, 2006.

[22] M. DE MENECH, P. GARSTECKI, F. JOUSSE et H. A. STONE. Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction. *J. Fluid Mech.* 595, 141-161, 2008.

[23] P. GUILLOT et A. COLIN. Stability of parallel flows in a microchannel after a T junction. *Phys. Rev. E* 72, 066301, 2005.

[24] J. D. TICE, A. D. LYON et R. F. ISMAGILOV. Effects of viscosity on droplet formation and mixing in microfluidic channels. *Anal. Chim. Acta* 507, 73-77, 2004.

[25] J. H. XU, S. W. LI, J. TAN, Y. J. WANG et G. S. LUO. Preparation of highly monodisperse droplet in a T-junction microfluidic device. *AIChE J.* 52, 3005-3010, 2006.

[26] G. F. CHRISTOPHER, N. N. NOHARUDDIN, J. A. TAYLOR et S. L. ANNA. Experimental observations of the squeezing-to-dripping transition in T-shaped microfluidic junctions. *Phys. Rev. E* 78, 036317, 2008.

[27] J. H. XU, S. W. LI, J. TAN, Y. J. WANG et G. S. LUO. Controllable preparation of monodisperse O/W and W/O emulsions in the same microfluidic device. *Langmuir* 22, 7943-7946, 2006.

[28] A. M. GAÑÁN-CALVO. Generation of steady liquid microthreads and micron-sized monodisperse sprays in gas streams. *Phys. Rev. Lett.* 80, 285-288, 1998.

[29] A. M. GAÑÁN-CALVO et J. M. GORDILLO. Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing. *Phys. Rev. Lett.* 87, 274501, 2001.

[30] A. S. UTADA, É. LORENCEAU, D. R. LINK, P. D. KAPLAN, H. A. STONE et D. A. WEITZ. Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device. *Science* 308, 537-541, 2005.

[31] S. L. ANNA, N. BONTOUX et H. A. STONE. Formation of dispersions using "flow focusing" in microchannels. *Appl. Phys. Lett.* 82, 364-366, 2003.

[32] W. LEE, L. M. WALKER et S. L. ANNA. Role of geometry and fluid properties in droplet and thread formation processes in planar flow focusing. *Phys. Fluids* 21, 032103, 2009.

[33] P. GARSTECKI, I. GITLIN, W. DILUZIO, G. M. WHITESIDES, E. KUMACHEVA et H. A. STONE. Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device. *Appl. Phys. Lett.* 85, 2649-2651, 2004.

[34] P. GARSTECKI, H. A. STONE et G. M. WHITESIDES. Mechanism for flow-rate controlled breakup in confined geometries: a route to monodisperse emulsions. *Phys. Rev. Lett.* 94, 164501, 2005.

[35] B. DOLLET, W. VAN HOEVE, J.-P. RAVEN, P. MARMOTTANT et M. VERSLUIS. Role of the channel geometry on the bubble pinch-off in flow-focusing devices. *Phys. Rev. Lett.* 100, 034504, 2008.

[36] M. J. JENSEN, H. A. STONE et H. BRUUS. A numerical study of two-phase Stokes flow in an axisymmetric flow-focusing device. *Phys. Fluids* 18, 077103, 2006.

[37] Z. NIE, M. SEO, S. XU, P. C. LEWIS, M. MOK, E. KUMACHEVA, G. M. WHITESIDES, P. GARSTECKI et H. A. STONE. Emulsification in a microfluidic flow-focusing device: effect of the viscosities of the liquids. *Microfluid. Nanofluid.* 5, 585-594, 2008.

[38] P. GARSTECKI, M. J. FUERSTMAN et G. M. WHITESIDES. Nonlinear dynamics of a flow-focusing bubble generator: an inverted dripping faucet. *Phys. Rev. Lett.* 94, 234502, 2005.

[39] P. GARSTECKI, M. J. FUERSTMAN et G. M. WHITESIDES. Oscillations with uniquely long periods in a microfluidic bubble generator. *Nat. Phys.* 1, 168-171, 2005.

[40] C. ZHOU, P. YUE et J. J. FENG. Formation of simple and compound drops in microfluidic devices. *Phys. Fluids* 18, 092105, 2006.

[41] H. A. STONE, A. D. STROOCK et A. AJDARI. Engineering flows in small devices: microfluidics toward a lab-on-a-chip. *Annu. Rev. Fluid Mech.* 36, 381-411, 2004.

[42] É. GUYON, J.-P. HULIN et L. PETIT. *Hydrodynamique physique*. EDP Sciences, Paris, 2001.

[43] H. BRUUS. *Theoretical Microfluidics*. Oxford University Press, New York, 2008.

[44] D. R. LINK, S. L. ANNA, D. A. WEITZ et H. A. STONE. Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices. *Phys. Rev. Lett.* 92, 054503, 2004.

[45] Y.-C. TAN, J. S. FISHER, A. I. LEE, V. CRISTINI et A. P. LEE. Design of microfluidic channel geometries for the control of droplet volume, chemical concentration, and sorting. *Lab Chip* 4, 292-298, 2004.

[46] W. ENGL, K. OHATA, P. GUILLOT, A. COLIN et P. PANIZZA. Selection of two-phase flow patterns at a simple junction in microfluidic devices. *Phys. Rev. Lett.* 96, 134505, 2006.

[47] Y.-C. TAN et A. P. LEE. Microfluidic separation of satellite droplets as the basis of a monodispersed micron and submicron emulsification system. *Lab Chip* 5, 1178-1183, 2005.

[48] W. ENGL, M. ROCHÉ, A. COLIN, P. PANIZZA et A. AJDARI. Droplet traffic at a simple junction at low capillary numbers. *Phys. Rev. Lett.* 95, 208304, 2005.

[49] L. F. CHEOW, L. YOBAS et D.-L. KWONG. Digital microfluidics: droplet based logic gates. *Appl. Phys. Lett.* 90, 054107, 2007.

[50] M. PRAKASH et N. GERSHENFELD. Microfluidic bubble logic. *Science* 315, 832-835, 2007.

[51] W.-H. TAN et S. TAKEUCHI. A trap-and-release integrated microfluidic system for dynamic microarray applications. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 104, 1146-1151, 2007.

[52] M. A. UNGER, H.-P. CHOU, T. THORSEN, A. SCHERER et S. R. QUAKE. Monolithic microfabricated valves and pumps by multilayer soft lithography. *Science* 288, 113-116, 2000.

[53] S.-K. HSIUNG, C.-T. CHEN et G.-B. LEE. Micro-droplet formation utilizing microfluidic flow focusing and controllable moving-wall chopping techniques. *J. Micromech. Microeng.* 16, 2403-2410, 2006.

[54] H. WILLAIME, V. BARBIER, L. KLOUL, S. MAINE et P. TABELING. Arnold tongues in a microfluidic drop emitter. *Phys. Rev. Lett.* 96, 054501, 2006.

[55] J.-C. GALAS, D. BARTOLO et V. STUDER. Active connectors for microfluidic drops on demand. *New J. Phys.* 11, 075027, 2009.

[56] A. R. ABATE, M. B. ROMANOWSKY, J. J. AGRESTI et D. A. WEITZ. Valve-based flow focusing for drop formation. *Appl. Phys. Lett.* 94, 023503, 2009.

[57] D. B. WEIBEL, M. KRUITHOF, S. POTENTA, S. K. SIA, A. LEE et G. M. WHITESIDES. Torque-actuated valves for microfluidics. *Anal. Chem.* 77, 4726-4733, 2005.

[58] D. B. WEIBEL, A. C. SIEGEL, A. LEE, A. H. GEORGE et G. M. WHITESIDES. Pumping fluids in microfluidic systems using the elastic deformation of poly(dimethylsiloxane). *Lab Chip* 7, 1832-1836, 2007.

[59] J. M. OTTINO et S. WIGGINS. Introduction: mixing in microfluidics. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 362, 923-935, 2004.

[60] A. D. STROOCK, S. K. W. DERTINGER, A. AJDARI, I. MEZIĆ, H. A. STONE et G. M. WHITESIDES. Chaotic mixer for microchannels. *Science* 295, 647-651, 2002.

[61] H. Song, J. D. Tice et R. F. Ismagilov. A microfluidic system for controlling reaction networks in time. *Angew. Chem. Int. Ed.* 42, 768-772, 2003.

[62] V. G. Levich et V. S. Krylov. Surface-tension-driven phenomena. *Annu. Rev. Fluid Mech* 1, 293-316, 1969.

[63] A. A. Darhuber et S. M. Troian. Principles of microfluidic actuation by modulation of surface stresses. *Annu. Rev. Fluid Mech.* 37, 425-455, 2005.

[64] M. Prakash, D. Quéré et J. W. M. Bush. Surface tension transport of prey by feeding shorebirds: the capillary ratchet. *Science* 320, 931-934, 2008.

[65] B. Zhao, J. S. Moore et D. J. Beebe. Surface-directed liquid flow inside microchannels. *Science* 291, 1023-1026, 2001.

[66] B. Zhao, N. O. L. Viernes, J. S. Moore et D. J. Beebe. Control and applications of immiscible liquids in microchannels. *J. Am. Chem. Soc.* 124, 5284-5285, 2002.

[67] R. Wang, K. Hashimoto, A. Fujishima, M. Chikuni, E. Kojima, A. Kitamura, M. Shimohigoshi et T. Watanabe. Light-induced amphiphilic surfaces. *Nature* 388, 431-432, 1997.

[68] K. Ichimura, S.-K. Oh et M. Nakagawa. Light-driven motion of liquids on a photoresponsive surface. *Science* 288, 1624-1626, 2000.

[69] F. Domingues Dos Santos et T. Ondarçuhu. Free-running droplets. *Phys. Rev. Lett.* 75, 2972-2975, 1995.

[70] J. Bico et D. Quéré. Liquid trains in a tube. *Europhys. Lett.* 51, 546-550, 2000.

[71] T. S. Sammarco et M. A. Burns. Thermocapillary pumping of discrete drops in microfabricated analysis devices. *AIChE J.* 45, 350-366, 1999.

[72] T. S. Sammarco et M. A. Burns. Heat-transfer analysis of microfabricated thermocapillary pumping and reaction devices. *J. Micromech. Microeng.* 10, 42-55, 2000.

[73] Z. Jiao, N.-T. Nguyen et X. Huang. Thermocapillary actuation of a water droplet encapsulated in an oil plug. *J. Micromech. Microeng.* 17, 1843-1852, 2007.

[74] P. S. Glockner et G. F. Naterer. Thermocapillary control of microfluidic transport with a stationary cyclic heat source. *J. Micromech. Microeng.* 15, 2216-2229, 2005.

[75] Z. Jiao, X. Huang, N.-T. Nguyen et P. Abgrall. Thermocapillary actuation of droplet in a planar microchannel. *Microfluid. Nanofluid.* 5, 205-214, 2008.

[76] A. A. Darhuber, J. P. Valentino, J. M. Davis, S. M. Troian et S. Wagner. Microfluidic actuation by modulation of surface stresses. *Appl. Phys. Lett.* 82, 657-659, 2003.

[77] A. A. Darhuber, J. M. Davis, S. M. Troian et W. W. Reisner. Thermocapillary actuation of liquid flow on chemically patterned surfaces. *Phys. Fluids* 15, 1295-1304, 2003.

[78] R. H. Farahi, A. Passian, T. L. Ferrell et T. Thundat. Microfluidic manipulation *via* Marangoni forces. *Appl. Phys. Lett.* 85, 4237-4239, 2004.

[79] D. E. Kataoka et S. M. Troian. Patterning liquid flow on the microscopic scale. *Nature* 402, 794-797, 1999.

[80] A. S. Basu et Y. B. Gianchandani. Virtual microfluidic traps, filters, channels and pumps using Marangoni flows. *J. Micromech. Microeng.* 18, 115031, 2008.

[81] A. S. Basu et Y. B. Gianchandani. Shaping high-speed Marangoni flow in liquid films by microscale perturbations in surface temperature. *Appl. Phys. Lett.* 90, 034102, 2007.

[82] S. Rybalko, N. Magome et K. Yoshikawa. Forward and backward laser-guided motion of an oil droplet. *Phys. Rev. E* 70, 046301, 2004.

[83] K. T. KOTZ, K. A. NOBLE et G. W. FARIS. Optical microfluidics. *Appl. Phys. Lett.* 85, 2658-2660, 2004.

[84] K. T. KOTZ, Y. GU et G. W. FARIS. Optically addressed droplet-based protein assay. *J. Am. Chem. Soc.* 127, 5736-5737, 2005.

[85] P.-G. DE GENNES. Guidage d'une microgoutte par un faisceau laser. *C. R. Physique* 6, 1149-1152, 2005.

[86] A. T. OHTA, A. JAMSHIDI, J. K. VALLEY, H.-Y. HSU et M. C. WU. Optically actuated thermocapillary movement of gas bubbles on an absorbing substrate. *Appl. Phys. Lett.* 91, 074103, 2007.

[87] R. H. FARAHI, A. PASSIAN, T. L. FERRELL et T. THUNDAT. Marangoni forces created by surface plasmon decay. *Opt. Lett.* 30, 616-618, 2005.

[88] R. H. FARAHI, A. PASSIAN, S. ZAHRAI, A. L. LEREU, T. L. FERRELL et T. THUNDAT. Microscale Marangoni actuation: all-optical and all-electrical methods. *Ultramicroscopy* 106, 815-821, 2006.

[89] P. T. NAGY et G. P. NEITZEL. Optical levitation and transport of microdroplets: proof of concept. *Phys. Fluids* 20, 101703, 2008.

[90] A. A. DARHUBER, J. Z. CHEN, J. M. DAVIS et S. M. TROIAN. A study of mixing in thermocapillary flows on micropatterned surfaces. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 362, 1037-1058, 2004.

[91] R. O. GRIGORIEV. Chaotic mixing in thermocapillary-driven microdroplets. *Phys. Fluids* 17, 033601, 2005.

[92] N.-T. NGUYEN, T.-H. TING, Y.-F. YAP, T.-N. WONG, J. C.-K. CHAI, W.-L. ONG, J. ZHOU, S.-H. TAN et L. YOBAS. Thermally mediated droplet formation in microchannels. *Appl. Phys. Lett.* 91, 084102, 2007.

[93] C. A. STAN, S. K. Y. TANG et G. M. WHITESIDES. Independent control of drop size and velocity in microfluidic flow-focusing generators using variable temperature and flow rate. *Anal. Chem.* 81, 2399-2402, 2009.

[94] K. HANDIQUE, D. T. BURKE, C. H. MASTRANGELO et M. A. BURNS. On-chip thermopneumatic pressure for discrete drop pumping. *Anal. Chem.* 73, 1831-1838, 2001.

[95] F. M. WEINERT et D. BRAUN. Optically driven fluid flow along arbitrary microscale patterns using thermoviscous expansion. *J. Appl. Phys.* 104, 104701, 2008.

[96] D. QUÉRÉ et A. AJDARI. Liquid drops : surfing the hot spot. *Nat. Mater.* 5, 429-430, 2006.

[97] G. L. LIU, J. KIM, Y. U. LU et L. P. LEE. Optofluidic control using photothermal nanoparticles. *Nat. Mater.* 5, 27-32, 2006.

[98] S. GHOSAL. Fluid mechanics of electroosmotic flow and its effect on band broadening in capillary electrophoresis. *Electrophoresis* 25, 214-228, 2004.

[99] A. AJDARI. Electro-osmosis on inhomogeneously charged surfaces. *Phys. Rev. Lett.* 75, 755-758, 1995.

[100] A. AJDARI. Generation of transverse fluid currents and forces by an electric field: electro-osmosis on charge-modulated and undulated surfaces. *Phys. Rev. E* 53, 4996-5005, 1996.

[101] A. D. STROOCK, M. WECK, D. T. CHIU, W. T. S. HUCK, P. J. A. KENIS, R. F. ISMAGILOV et G. M. WHITESIDES. Patterning electro-osmotic flow with patterned surface charge. *Phys. Rev. Lett.* 84, 3314-3317, 2000.

[102] A. AJDARI. Pumping liquids using asymmetric electrode arrays. *Phys. Rev. E* 61, R45-R48, 2000.

[103] L. OROSZI, A. DÉR, H. KIREI, P. ORMOS et V. RAKOVICS. Control of electro-osmostic flow by light. *Appl. Phys. Lett.* 89, 263508, 2006.

[104] D. R. LINK, E. GRASLAND-MONGRAIN, A. DURI, F. SARRAZIN, Z. CHENG, G. CRISTOBAL, M. MARQUEZ et D. A. WEITZ. Electric control of droplets in microfluidic devices. *Angew. Chem. Int. Ed.* 45, 2556-2560, 2006.

[105] K. AHN, C. KERBAGE, T. P. HUNT, R. M. WESTERVELT, D. R. LINK et D. A. WEITZ. Dielectrophoretic manipulation of drops for high-speed microfluidic sorting devices. *Appl. Phys. Lett.* 88, 024104, 2006.

[106] K. AHN, J. AGRESTI, H. CHONG, M. MARQUEZ et D. A. WEITZ. Electrocoalescence of drops synchronized by size-dependent flow in microfluidic channels. *Appl. Phys. Lett.* 88, 264105, 2006.

[107] N. G. GREEN, H. MORGAN et J. J. MILNER. Manipulation and trapping of sub-micron bioparticles using dielectrophoresis. *J. Biochem. Biophys. Methods* 35, 89-102, 1997.

[108] M. P. HUGHES et H. MORGAN. Dielectrophoretic trapping of single sub-micrometre scale bioparticles. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 31, 2205-2210, 1998.

[109] A. ASHKIN. Acceleration and trapping of particles by radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.* 24, 156-159, 1970.

[110] A. ASHKIN. Optical trapping and manipulation of neutral particles using lasers. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 94, 4853-4860, 1997.

[111] A. ASHKIN, J. M. DZIEDZIC, J. E. BJORKHOLM et S. CHU. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles. *Opt. Lett.* 11, 288-290, 1986.

[112] A. JONÁŠ et P. ZEMÁNEK. Light at work: the use of optical forces for particle manipulation, sorting, and analysis. *Electrophoresis* 29, 4813-4851, 2008.

[113] M. OZKAN, M. WANG, C. OZKAN, R. FLYNN, A. BIRKBECK et S. ESENER. Optical manipulation of objects and biological cells in microfluidic devices. *Biomed. Microdevices* 5, 61-67, 2003.

[114] J. ENGER, M. GOKSÖR, K. RAMSER, P. HAGBERG et D. HANSTORP. Optical tweezers applied to a microfluidic system. *Lab Chip* 4, 196-200, 2004.

[115] R. DI LEONARDO, J. LEACH, H. MUSHFIQUE, J. M. COOPER, G. RUOCCO et M. J. PADGETT. Multipoint holographic optical velocimetry in microfluidic systems. *Phys. Rev. Lett.* 96, 134502, 2006.

[116] D. G. GRIER. A revolution in optical manipulation. *Nature* 424, 810-816, 2003.

[117] P. GALAJDA et P. ORMOS. Complex micromachines produced and driven by light. *Appl. Phys. Lett.* 78, 249-251, 2001.

[118] J. LEACH, H. MUSHFIQUE, R. DI LEONARDO, M. J. PADGETT et J. M. COOPER. An optically driven pump for microfluidics. *Lab Chip* 6, 735-739, 2006.

[119] S. L. NEALE, M. P. MACDONALD, K. DHOLAKIA et T. F. KRAUSS. All-optical control of microfluidic components using form birefringence. *Nat. Mater.* 4, 530-533, 2005.

[120] K. LADAVAC et D. G. GRIER. Microoptomechanical pumps assembled and driven by holographic optical vortex arrays. *Opt. Express* 12, 1144-1149, 2004.

[121] A. TERRAY, J. OAKEY et D. W. M. MARR. Microfluidic control using colloidal devices. *Science* 296, 1841-1844, 2002.

[122] M. P. MACDONALD, G. C. SPALDING et K. DHOLAKIA. Microfluidic sorting in an optical lattice. *Nature* 426, 421-424, 2003.

[123] R. W. APPLEGATE JR., J. SQUIER, T. VESTAD, J. OAKEY et D. W. M. MARR. Optical trapping, manipulation, and sorting of cells and colloids in microfluidic systems with diode laser bars. *Opt. Express* 12, 4390-4398, 2004.

[124] R. W. APPLEGATE JR., J. SQUIER, T. VESTAD, J. OAKEY et D. W. M. MARR. Fiber-focused diode bar optical trapping for microfluidic flow manipulation. *Appl. Phys. Lett.* 92, 013904, 2008.

[125] A. ASHKIN et J. M. DZIEDZIC. Radiation pressure on a free liquid surface. *Phys. Rev. Lett.* 30, 139-142, 1973.

[126] A. CASNER. *Déformations, manipulations et instabilités d'interfaces liquides induites par la pression de radiation d'une onde laser.* Thèse de Doctorat, université Bordeaux 1, 2002.

[127] A. CASNER et J.-P. DELVILLE. Giant deformations of a liquid-liquid interface induced by the optical radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.* 87, 054503, 2001.

[128] A. CASNER et J.-P. DELVILLE. Laser-sustained liquid bridges. *Europhys. Lett.* 65, 337-343, 2004.

[129] A. CASNER et J.-P. DELVILLE. Laser-induced hydrodynamic instability of fluid interfaces. *Phys. Rev. Lett.* 90, 144503, 2003.

[130] A. CASNER, J.-P. DELVILLE et I. BREVIK. Asymmetric optical radiation pressure effects on liquid interfaces under intense illumination. *J. Opt. Soc. Am. B* 20, 2355-2362, 2003.

[131] R. D. SCHROLL, R. WUNENBURGER, A. CASNER, W. W. ZHANG et J.-P. DELVILLE. Liquid transport due to light scattering. *Phys. Rev. Lett.* 98, 133601, 2007.

[132] B. ISSENMANN. *Déformations d'interfaces fluides par la pression de radiation acoustique.* Thèse de Doctorat, université Bordeaux 1, 2007.

[133] J.-P. RAVEN. *Micro-mousse : génération, écoulement et manipulation.* Thèse de Doctorat, université Joseph Fourier – Grenoble 1, 2007.

[134] J. GLÜCKSTAD. Microfluidics: sorting particles with light. *Nat. Mater.* 3, 9-10, 2004.

[135] C. MARANGONI. Ueber die Ausbreitung der Tropfen einer Flüssigkeit auf der Oberfläche einer anderen. *Ann. Phys. Chem.* 219, 337-354, 1871.

[136] N. O. YOUNG, J. S. GOLDSTEIN et M. J. BLOCK. The motion of bubbles in a vertical temperature gradient. *J. Fluid Mech.* 6, 350-356, 1959.

[137] J. S. HADAMARD. Mouvement permanent lent d'une sphere liquide et visqueuse dans un liquide visqueux. *C. R. Acad. Sci.* 152, 1735-1738, 1911.

[138] W. RYBCZYNSKI. Uber die fortschreitende bewegung einer flussigen kugel in einem zahen medium. *Bull. Acad. Sci. Cracovie* 1, 40-46, 1911.

[139] M. HÄHNEL, V. DELITZSCH et H. ECKELMANN. The motion of droplets in a vertical temperature gradient. *Phys. Fluids A* 1, 1460-1466, 1989.

[140] K. D. BARTON et R. S. SUBRAMANIAN. The migration of liquid drops in a vertical temperature gradient. *J. Colloid Interface Sci.* 133, 211-222, 1989.

[141] H. S. KIM et R. S. SUBRAMANIAN. Thermocapillary migration of a droplet with insoluble surfactant: I. Surfactant cap. *J. Colloid Interface Sci.* 127, 417-428, 1989.

[142] H. S. KIM et R. S. SUBRAMANIAN. Thermocapillary migration of a droplet with insoluble surfactant: II. General case. *J. Colloid Interface Sci.* 130, 112-129, 1989.

[143] Y. S. CHEN, Y. L. LU, Y. M. YANG et J. R. MAA. Surfactant effects on the motion of a droplet in thermocapillary migration. *Int. J. Multiphase Flow* 23, 325-335, 1997.

[144] Z. KHATTARI, P. STEFFEN et T. M. FISCHER. Migration of a droplet in a liquid: effect of insoluble surfactants and thermal gradient. *J. Phys.: Condens. Matter* 14, 4823-4828, 2002.

[145] Yu. K. BRATUKHIN et A. L. ZUEV. Thermocapillary drift of an air bubble in a horizontal Hele-Shaw cell. *Fluid Dyn.* 19, 393-398, 1984.

[146] Yu. K. BRATUKHIN, K. G. KOSTAREV, A. VIVIANI et A. L. ZUEV. Experimental study of Marangoni bubble migration in normal gravity. *Exp. Fluids* 38, 594-605, 2005.

[147] A. MAZOUCHI et G. M. HOMSY. Thermocapillary migration of long bubbles in cylindrical capillary tubes. *Phys. Fluids* 12, 542-549, 2000.

[148] A. MAZOUCHI et G. M. HOMSY. Thermocapillary migration of long bubbles in polygonal tubes. I. Theory. *Phys. Fluids* 13, 1594-1600, 2001.

[149] É. LAJEUNESSE et G. M. HOMSY. Thermocapillary migration of long bubbles in polygonal tubes. II. Experiments. *Phys. Fluids* 15, 308-314, 2003.

[150] J. C. LOULERGUE, P. MANNEVILLE et Y. POMEAU. Interface deflections induced by the Marangoni effect: an application to infrared-visible image conversion. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 14, 1967-1977, 1981.

[151] J. C. LOULERGUE. Deformation of surfaces of a thin liquid film by thermal perturbation. *Thin Solid Films* 82, 61-71, 1981.

[152] J. C. LOULERGUE, Y. LÉVY et C. IMBERT. Thermal imaging system with a two-phase ternary mixture of liquids. *Opt. Commun.* 45, 149-154, 1983.

[153] B. A. BEZUGLYĬ et O. A. TARASOV. Optical properties of a thermocapillary depression. *Opt. Spectrosc.* 92, 609-613, 2002.

[154] N. POSTACIOGLU, P. KAPADIA et J. DOWDEN. A theoretical model of thermocapillary flows in laser welding. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 24, 15-20, 1991.

[155] B.-C. SIM et W.-S. KIM. Melting and dynamic-surface deformation in laser surface heating. *Int. J. Heat Mass Transfer* 48, 1137-1144, 2005.

[156] J.-M. DREZET, S. PELLERIN, C. BEZENÇON et S. MOKADEM. Modelling the Marangoni convection in laser heat treatment. *J. Phys. IV* 120, 299-306, 2004.

[157] Al. A. KOLOMENSKII et H. A. SCHUESSLER. Nonlinear excitation of capillary waves by the Marangoni motion induced with a modulated laser beam. *Phys. Rev. B* 52, 16-19, 1995.

[158] M. GUGLIOTTI, M. S. BAPTISTA et M. J. POLITI. Laser-induced Marangoni convection in the presence of surfactant monolayers. *Langmuir* 18, 9792-9798, 2002.

[159] A. GOEBEL et K. LUNKENHEIMER. Interfacial tension of the water/n-alkane interface. *Langmuir* 13, 369-372, 1997.

[160] R. DREYFUS, P. TABELING et H. WILLAIME. Ordered and disordered patterns in two-phase flows in microchannels. *Phys. Rev. Lett.* 90, 144505, 2003.

[161] É. VERNEUIL, M. L. CORDERO, F. GALLAIRE et C. N. BAROUD. Laser-induced force on a microfluidic drop: origin and magnitude. *Langmuir* 25, 5127-5134, 2009.

[162] W. D. HARKINS et F. E. BROWN. The determination of surface tension (free surface energy), and the weight of falling drops: the surface tension of water and benzene by the capillary height method. *J. Am. Chem. Soc.* 41, 499-524, 1919.

[163] `http://omlc.ogi.edu/spectra/PhotochemCAD/html/fluorescein-dibase.html`.

[164] `http://rsb.info.nih.gov/ij/`.

[165] D. C. DUFFY, J. C. MCDONALD, O. J. A. SCHUELLER et G. M. WHITESIDES. Rapid prototyping of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane). *Anal. Chem.* 70, 4974-4984, 1998.

[166] T. CUBAUD, M. TATINENI, X. ZHONG et C.-M. HO. Bubble dispenser in microfluidic devices. *Phys. Rev. E* 72, 037302, 2005.

[167] A. R. ABATE, A. POITZSCH, Y. HWANG, J. LEE, J. CZERWINSKA et D. A. WEITZ. Impact of inlet channel geometry on microfluidic drop formation. *Phys. Rev. E* 80, 026310, 2009.

[168] J. EGGERS. Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows. *Rev. Mod. Phys.* 69, 865-930, 1997.

[169] S. L. ANNA et H. C. MAYER. Microscale tipstreaming in a microfluidic flow focusing device. *Phys. Fluids* 18, 121512, 2006.

[170] M. ABRAMOWITZ et I. A. STEGUN. *Handbook of Mathematical Functions.* Dover, New York, 1972.

[171] A. NADIM, A. BORHAN et H. HAJ-HARIRI. Tangential stress and Marangoni effects at a fluid-fluid interface in a Hele-Shaw cell. *J. Colloid and Interface Sci.* 181, 159-164, 1996.

[172] W. BOOS et A. THESS. Thermocapillary flow in a Hele-Shaw cell. *J. Fluid Mech.* 352, 305-330, 1997.

[173] C. N. BAROUD, J.-P. DELVILLE, F. GALLAIRE et R. WUNENBURGER. Thermocapillary valve for droplet production and sorting. *Phys. Rev. E* 75, 046302, 2007.

[174] B. J. ADZIMA et S. S. VELANKAR. Pressure drops for droplet flows in microfluidic channels. *J. Micromech. Microeng.* 16, 1504-1510, 2006.

[175] M. ROBERT DE SAINT VINCENT, R. WUNENBURGER et J.-P. DELVILLE. Laser switching and sorting for high speed digital microfluidics. *Appl. Phys. Lett.* 92, 154105, 2008.

[176] N.-T. NGUYEN, S. LASSEMONO et F. A. CHOLLET. Optical detection for droplet size control in microfluidic droplet-based analysis systems. *Sens. Actuators B* 117, 431-436, 2006.

[177] S.-A. LEUNG, J. B. EDEL, R. C. R. WOOTTON et A. J. DEMELLO. Continuous real-time bubble monitoring in microchannels using refractive index detection. *Meas. Sci. Technol.* 15, 290-296, 2004.

[178] K. HIRONAGA et T. NISHIURA. *Apparatus for Measuring Two-Phase Flow.* Brevet américain n° 4516432, 1985.

[179] A. CARTELLIER. Optical probes for local void fraction measurements: characterization of performance. *Rev. Sci. Instrum.* 61, 874-886, 1990.

[180] A. CARTELLIER. Simultaneous void fraction measurement, bubble velocity, and size estimate using a single optical probe in gas–liquid two-phase flows. *Rev. Sci. Instrum.* 63, 5442-5453, 1992.

[181] H.-J. LIM, K.-A. CHANG, C. B. SU et C.-Y. CHEN. Bubble velocity, diameter, and void fraction measurements in a multiphase flow using fiber optic reflectometer. *Rev. Sci. Instrum.* 79, 125105, 2008.

[182] H. I. DE LASA, S.-L. LEE et M. A. BERGOUGNOU. *Multi-Probe System for Measuring Bubble Characteristics Gas Hold-up, Liquid Hold-up and Solid Hold-up in a Three-Phase Fluidized Bed.* Brevet américain n° 4659218, 1987.

[183] J. A. COX et C. J. ZINS. *Cytometer Cell Counting and Size Measurement Method.* Brevet international n° WO/2006/119106, 2006.

[184] J. A. COX et C. J. ZINS. *Particle Parameter Determination System.* Brevet américain n° 7688427, 2010.

[185] X. NIU, M. ZHANG, S. PENG, W. WEN et P. SHENG. Real-time detection, control, and sorting of microfluidic droplets. *Biomicrofluidics* 1, 044101, 2007.

[186] F. JOUSSE, G. LIAN, R. JANES et J. MELROSE. Compact model for multi-phase liquid-liquid flows in micro-fluidic devices. *Lab Chip* 5, 646-656, 2005.

[187] J.-P. DELVILLE, J. PLANTARD, S. CASSAGNÈRE et M. ROBERT DE SAINT VINCENT. *Dispositif de mesure pour la caractérisation d'écoulements diphasiques.* Demande de brevet français n° 09 03303, 2009.

[188] F. SAVART. Mémoire sur la constitution des veines liquides lancées par des orifices circulaires en mince paroi. *Ann. Chim. Phys.* 53, 337-398, 1833.

[189] J. EGGERS et E. VILLERMAUX. Physics of liquid jets. *Rep. Prog. Phys.* 71, 036601, 2008.

[190] J. PLATEAU. *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires.* Gauthier-Villars, Paris, 1873.

[191] J. W. STRUTT, LORD RAYLEIGH. On the instability of jets. *Proc. London Math. Soc.* 10, 4-13, 1878.

[192] J. W. STRUTT, LORD RAYLEIGH. On the capillary phenomena of jets. *Proc. R. Soc. Lond.* 29, 71-97, 1879.

[193] J. W. STRUTT, LORD RAYLEIGH. On the stability of cylindrical fluid surfaces. *Phil. Mag.* 34, 145-154, 1892.

[194] S. CHANDRASEKHAR. *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability.* Oxford University, New York/London, 1961.

[195] S. TOMOTIKA. On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid. *Proc. R. Soc. Lond. A* 150, 322-337, 1935.

[196] S. J. LEIB et M. E. GOLDSTEIN. The generation of capillary instabilities on a liquid jet. *J. Fluid Mech.* 168, 479-500, 1986.

[197] W. VAN SAARLOOS. Front propagation into unstable states: marginal stability as a dynamical mechanism for velocity selection. *Phys. Rev. A* 37, 211-229, 1988.

[198] W. VAN SAARLOOS. Front propagation into unstable states. II. Linear versus nonlinear marginal stability and rate of convergence. *Phys. Rev. A* 39, 6367-6390, 1989.

[199] P. A. MONKEWITZ. The role of absolute and convective instability in predicting the behaviour of fluid systems. *Eur. J. Mech. B/Fluids* 9, 395-413, 1990.

[200] I. VIHINEN, A. M. HONOHAN et S. P. LIN. Image of absolute instability in a liquid jet. *Phys. Fluids* 9, 3117-3119, 1997.

[201] A. S. UTADA, A. FERNANDEZ-NIEVES, J. M. GORDILLO et D. A. WEITZ. Absolute instability of a liquid jet in a coflowing stream. *Phys. Rev. Lett.* 100, 014502, 2008.

[202] A. FRISCHKNECHT. Stability of cylindrical domains in phase-separating binary fluids in shear flow. *Phys. Rev. E* 58, 3495-3514, 1998.

[203] M. SAN MIGUEL, M. GRANT et J. D. GUNTON. Phase separation in two-dimensional binary fluids. *Phys. Rev. A* 31, 1001-1005, 1985.

[204] K. B. MIGLER. String formation in sheared polymer blends: coalescence, breakup, and finite size effects. *Phys. Rev. Lett.* 86, 1023-1026, 2001.

[205] Y. SON, N. S. MARTYS, J. G. HAGEDORN et K. B. MIGLER. Suppression of capillary instability of a polymeric thread via parallel plate confinement. *Macromolecules* 36, 5825-5833, 2003.

[206] K. J. HUMPHRY, A. AJDARI, A. FERNÁNDEZ-NIEVES, H. A. STONE et D. A. WEITZ. Suppression of instabilities in multiphase flow by geometric confinement. *Phys. Rev. E* 79, 056310, 2009.

[207] P. GUILLOT, A. COLIN, A. S. UTADA et A. AJDARI. Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds numbers. *Phys. Rev. Lett.* 99, 104502, 2007.

[208] P. GUILLOT, A. COLIN et A. AJDARI. Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds number in various geometries. *Phys. Rev. E* 78, 016307, 2008.

[209] M. A. HERRADA, A. M. GAÑÁN-CALVO et P. GUILLOT. Spatiotemporal instability of a confined capillary jet. *Phys. Rev. E* 78, 046312, 2008.

[210] P. GUILLOT. *Écoulement de fluides immiscibles dans un canal submillimétrique : stabilité et application à la rhéologie.* Thèse de Doctorat, université Bordeaux 1, 2006.

[211] P. GUILLOT, A. AJDARI, J. GOYON, M. JOANICOT et A. COLIN. Droplets and jets in microfluidic devices. *C. R. Chimie* 12, 247-257, 2009.

[212] D. H. PEREGRINE, G. SHOKER et A. SYMON. The bifurcation of liquid bridges. *J. Fluid Mech.* 212, 25-39, 1990.

[213] J. EGGERS. Universal pinching of 3D axisymmetric free-surface flow. *Phys. Rev. Lett.* 71, 3458-3460, 1993.

[214] D. T. PAPAGEORGIOU. On the breakup of viscous liquid threads. *Phys. Fluids* 7, 1529-1544, 1995.

[215] A. ROTHERT, R. RICHTER et I. REHBERG. Transition from symmetric to asymmetric scaling function before drop pinch-off. *Phys. Rev. Lett.* 87, 084501, 2001.

[216] R. F. DAY, E. J. HINCH et J. R. LISTER. Self-similar capillary pinchoff of an inviscid fluid. *Phys. Rev. Lett.* 80, 704-707, 1998.

[217] A. U. CHEN, P. K. NOTZ et O. A. BASARAN. Computational and experimental analysis of pinch-off and scaling. *Phys. Rev. Lett.* 88, 174501, 2002.

[218] J. R. LISTER et H. A. STONE. Capillary breakup of a viscous thread surrounded by another viscous fluid. *Phys. Fluids* 10, 2758-2764, 1998.

[219] I. COHEN, M. P. BRENNER, J. EGGERS et S. R. NAGEL. Two fluid drop snap-off problem: experiments and theory. *Phys. Rev. Lett.* 83, 1147-1150, 1999.

[220] W. W. ZHANG et J. R. LISTER. Similarity solutions for capillary pinch-off in fluids of differing viscosity. *Phys. Rev. Lett.* 83, 1151-1154, 1999.

[221] I. COHEN et S. R. NAGEL. Testing for scaling behavior dependence on geometrical and fluid parameters in the two fluid drop snap-off problem. *Phys. Fluids* 13, 3533-3541, 2001.

[222] J. C. BURTON, R. WALDREP et P. TABOREK. Scaling and instabilities in bubble pinch-off. *Phys. Rev. Lett.* 94, 184502, 2005.

[223] J. M. GORDILLO, A. SEVILLA, J. RODRÍGUEZ-RODRÍGUEZ et C. MARTÍNEZ-BAZÁN. Axisymmetric bubble pinch-off at high Reynolds numbers. *Phys. Rev. Lett.* 95, 194501, 2005.

[224] R. W. FAIDLEY et R. L. PANTON. Measurement of liquid jet instability induced by surface tension variations. *Exp. Therm. Fluid Sci.* 3, 383-387, 1990.

[225] N. M. NAHAS et R. L. PANTON. Control of surface tension flows: instability of a liquid jet. *J. Fluids Eng.* 112, 296-301, 1990.

[226] B. BARBET. *Stimulations électrohydrodynamique et thermique de jets de liquide conducteur*. Thèse de Doctorat, université Joseph Fourier – Grenoble 1, 1997.

[227] E. P. FURLANI. Temporal instability of viscous liquid microjets with spatially varying surface tension. *J. Phys. A: Math. Gen.* 38, 263-276, 2005.

[228] E. P. FURLANI, B. G. PRICE, G. HAWKINS et A. G. LOPEZ. Thermally induced Marangoni instability of liquid microjets with application to continuous inkjet printing. *In 2006 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show*, 2006.

[229] J. M. CHWALEK, D. P. TRAUERNICHT, C. N. DELAMETTER, R. SHARMA, D. L. JEANMAIRE, C. N. ANAGNOSTOPOULOS, G. A. HAWKINS, B. AMBRAVANESWARAN, J. C. PANDITARATNE et O. A. BASARAN. A new method for deflecting liquid microjets. *Phys. Fluids* 14, L37-L40, 2002.

[230] M. P. BRENNER et S. PARUCHURI. Thermal bending of liquid sheets and jets. *Phys. Fluids* 15, 3568-3571, 2003.

[231] `http://www.associationavh.com/fr/feuilles.html`.

[232] M. HASHIMOTO, P. GARSTECKI, H. A. STONE et G. M. WHITESIDES. Interfacial instabilities in a microfluidic Hele-Shaw cell. *Soft Matter* 4, 1403-1413, 2008.

[233] H. E. CLINE et T. R. ANTHONY. Heat treating and melting material with a scanning laser or electron beam. *J. Appl. Phys.* 48, 3895-3900, 1977.

[234] M. L. BURGENER et R. E. REEDY. Temperature distributions produced in a two-layer structure by a scanning cw laser or electron beam. *J. Appl. Phys.* 53, 4357-4363, 1982.

[235] D. J. SANDERS. Temperature distributions produced by scanning Gaussian laser beams. *Appl. Opt.* 23, 30-35, 1984.

[236] O. MANCA, B. MORRONE et V. NASO. Quasi-steady-state three-dimensional temperature distribution induced by a moving circular gaussian heat source in a finite depth solid. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38, 1305-1315, 1995.

[237] M. ROCHÉ. *Rupture d'interfaces en présence d'agents de surface.* Thèse de Doctorat, université Bordeaux 1, 2008.

[238] M. ROCHÉ, M. AYTOUNA, D. BONN et H. KELLAY. Effect of surface tension variations on the pinch-off behavior of small fluid drops in the presence of surfactants. *Phys. Rev. Lett.* 103, 264501, 2009.

[239] S. D. HUDSON, J. T. CABRAL, W. J. GOODRUM JR., K. L. BEERS et E. J. AMIS. Microfluidic interfacial tensiometry. *Appl. Phys. Lett.* 87, 081905, 2005.

[240] J. T. CABRAL et S. D. HUDSON. Microfluidic approach for rapid multicomponent interfacial tensiometry. *Lab Chip* 6, 427-436, 2006.

[241] J. D. MARTIN et S. D. HUDSON. Mass transfer and interfacial properties in two-phase microchannel flows. *New J. Phys.* 11, 115005, 2009.

[242] B. AMBRAVANESWARAN, S. D. PHILLIPS et O. A. BASARAN. Theoretical analysis of a dripping faucet. *Phys. Rev. Lett.* 85, 5332-5335, 2000.

Résumé

L'effet thermocapillaire (ou Marangoni) est la résultante mécanique d'un gradient de tension interfaciale induit par la présence d'un gradient de température sur une interface fluide. Il se manifeste par (i) la migration d'un objet fini (goutte, bulle) immergé, et (ii) une déflexion de l'interface. Sa nature interfaciale le rend particulièrement pertinent à petite échelle, notamment en microfluidique diphasique. Ce travail de thèse montre comment un effet thermocapillaire induit localement par chauffage laser peut être utilisé pour produire des composants optofluidiques élémentaires (vanne, aiguillage, échantillonneur), et en présente une étude quantitative. La déstabilisation d'un jet microfluidique forcée par laser, conduisant à sa rupture, est également présentée et caractérisée. Cette « boîte à outils » optique fournit ainsi une approche sans contact, pour produire et manipuler des gouttes en microfluidique digitale sans nécessité d'une microfabrication dédiée. Par ailleurs, afin de caractériser sur des temps longs les gouttes produites, et ainsi considérer des populations statistiquement significatives, un dispositif optoélectronique simple pour mesurer les gouttes et leur vitesse en temps réel a également été développé.

Mots-clés : Microfluidique diphasique
Effet Marangoni
Micromanipulation optique
Optofluidique
Instabilité de Rayleigh-Plateau
Rupture d'interface
Caractérisation d'écoulements diphasiques

Abstract

The thermocapillary (or Marangoni) effect is the mechanical result of an interfacial tension gradient induced by a temperature gradient on a fluid interface. This effect manifests itself by inducing (i) the migration of an immersed finite-size object (droplet, bubble), and (ii) a deflexion of the interface. Due to its interfacial nature, the Marangoni effect is particularly relevant at small length scales, especially in the context of two-phase microfluidics. This thesis aims at applying the thermocapillary effect locally induced by laser heating, in order to create some basic optofluidic actuators (valve, switch, sampler). A quantitative study of these actuators is presented. The laser-forced destabilization of a co-flowing microfluidic jet, leading to its breakup, is also investigated. This "optical toolbox" represents a non-contacting, and microfabrication-free approach for the production and handling of droplets in digital microfluidics. Moreover, to characterize these droplet over long times, thus considering statistically significant populations, a simple optoelectronic device has been developed for measuring the size and velocity of the droplets in real time.

Keywords: Two-phase microfluidics
Marangoni effect
Optical micromanipulation
Optofluidics
Rayleigh-Plateau instability
Interface breakup
Droplet characterization

Centre de physique moléculaire optique et hertzienne (CPMOH)
UMR 5798 CNRS – université Bordeaux 1 351 cours de la Libération 33405 Talence cedex