



HAL
open science

Manipulation et interaction de micro-bulles sous champ acoustique

David Rabaud

► **To cite this version:**

David Rabaud. Manipulation et interaction de micro-bulles sous champ acoustique. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2010. Français. NNT: . tel-00536932

HAL Id: tel-00536932

<https://theses.hal.science/tel-00536932>

Submitted on 17 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.



UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE GRENOBLE

Spécialité : Physique / Physique des matériaux

Arrêté ministériel du 7 août 2006

présentée et soutenue publiquement par

David RABAUD

le 29 octobre 2010

**MANIPULATION ET INTERACTION
DE MICRO-BULLES
SOUS CHAMP ACOUSTIQUE
APPLICATIONS AUX LABORATOIRES SUR PUCE**

Thèse dirigée par Philippe MARMOTTANT

JURY

M. Olivier BOU MATAR	Professeur Ecole Centrale de Lille	Rapporteur
M. Charles BAROUD	Professeur Ecole Polytechnique	Rapporteur
M. Philippe MARMOTTANT	Chargé de Recherche CNRS	Examineur
M. Pierre THIBAUT	Professeur UJF Grenoble	Examineur
M. Benjamin DOLLET	Chargé de Recherche CNRS	Examineur

Thèse préparée au sein du Laboratoire de Spectrométrie Physique dans l'Ecole
Doctorale de Physique de Grenoble

Remerciements

J'ai l'occasion ici de revenir sur ces trois années écoulées et de remercier toutes les personnes qui m'ont aidé, de près ou de loin.

Je remercie avant tout mon directeur de thèse, Philippe Marmottant, qui est allé jusqu'en Allemagne pour chercher un sujet d'étude. Ton encadrement agréable et ton implication dans le travail de recherche sont très appréciables, toujours présent pour relever un défi technique ou scientifique. Ton optimisme à toute épreuve s'équilibre bien avec ma nature plutôt pessimiste. Merci pour ta gentillesse et ton encouragement.

Je remercie aussi les membres du jury, et notamment Olivier BOU MATAR et Charles BAROUD pour avoir revu et évalué en détail mon mémoire de thèse. Merci aussi à Benjamin DOLLET pour avoir participé à ce jury, je suis content que ce soit la première thèse que tu évalue. Te voila passé de l'autre côté.

Merci aussi aux personnes avec qui j'ai travaillé. Merci à Patrice, notre homme à tout faire, sans qui la recherche n'avancerait pas (ou du moins pas si vite). Toujours disponible pour nous épargner des sueurs, tu nous fait gagner un temps considérable. Merci à Mylène qui a débloqué une nouvelle piste d'étude lors de son stage. Bien que ton sujet principal ait échoué, tu as initié une grande partie de ma thèse par tes expériences. Non, vraiment, continue les expériences, ça te va bien. Enfin, un grand merci à Pierre THIBAUT qui nous offre une nouvelle vision scientifique à laquelle nous ne sommes pas habituer. Notamment, ta façon d'expliquer les résultats lors d'une présentation ou pour un article sort toujours de l'ordinaire. Tout ceci demande beaucoup d'effort mais cela en vaut vraiment la peine.

Un grand merci général à tous les membres du labo qui rendent l'ambiance de travail agréable et sympathique. Merci aux thésards de DyFCom : Giovanni, Valentina, Aparna (I'm glad you don't speak french, I improved my english thanks to you), Levan, Michaël, Pierre-Yves. Merci pour les moments de détente et les (nombreuses ?) pauses café que l'on a prises. Un remerciement plus personel à Mylène qui était là et qui m'a encouragé lors de ma crise existentielle de deuxième

année. J'espère ne pas t'avoir ennuyé avec mes soucis et je te souhaite de trouver très vite un financement pour ta thèse et plein de résultats passionnants. Merci à Gwennou pour les discussions que l'ont a eu et qui m'ont aidé à dissiper mes doutes. Et comment ne pas remercier Catherine pour la bonne ambiance que tu mets par ta bonne humeur permanente. Le laboratoire et l'équipe ne seraient pas les mêmes sans toi. Il en va de même pour Jessie, tu es incontournable dans le laboratoire, bien que tout le monde n'en ai pas conscience. Je pense aussi aux autres secrétaires qui travaillent plus dans l'ombre mais qui sont tout aussi indispensables : Ghislaine, Sabine, Nadine, Chantal, Anyk, Joëlle.

Et bien sûr, je me dois de remercier ma famille. Merci à vous les parents pour m'avoir toujours soutenu. Cela procure un grand réconfort de savoir qu'il y a toujours quelqu'un pour m'encourager et m'aider en cas de problème. Un énorme merci à mon frère qui me donne les meilleurs conseils pour me guider, pour m'éviter les difficultés. Tu es passé avant moi dans tout ce que je fais, et c'est un appui formidable que tu me procures. Merci infiniment à vous trois.

Table des matières

1	Introduction	5
1.1	Contexte	5
1.1.1	Les bulles et l'acoustique	5
1.1.2	Les laboratoires sur puce	6
1.2	Etat de l'art	8
1.2.1	... de la microfluidique	8
1.2.2	... de la micromanipulation	11
1.3	Objectifs et plan de la thèse	15
2	Matériel et méthodes	17
2.1	Fabrication des microcanaux	17
2.1.1	Photo-lithographie : fabrication du moule	18
2.1.2	Protocole pour un moule multicouche	20
2.1.3	Lithographie douce : utilisation du PDMS	24
2.2	Dispositif expérimental	26
2.2.1	Géométrie du canal microfluidique	26
2.2.2	Expériences sous gravité	31
2.2.3	Expériences sous champ acoustique	31
2.2.4	Paramètres de contrôle	36
2.2.5	Visualisation et mesures	38
2.3	Conclusion	39
3	Microbulles : génération et écoulement	43
3.1	Génération des doubles émulsions	43
3.2	Écoulement des bulles en microcanaux	49
3.2.1	Modélisation de la friction et de la traînée	49
3.2.2	Calibration par la force d'Archimède	52
3.2.3	Discussion	55
3.3	Conclusion	55
4	Microbulles : manipulation acoustique	57
4.1	La force de Bjerknes	57
4.1.1	Modélisation de la bulle par un oscillateur	57

4.1.2	Mesures de la force acoustique à la résonance	62
4.2	Applications aux laboratoires sur puce	65
4.2.1	Le tri en taille	65
4.2.2	La division asymétrique contrôlée et l'aiguillage	66
4.2.3	La manipulation de gouttes	68
4.3	Conclusion	70
5	Microbulles : interactions acoustiques	73
5.1	Etude du cristal acoustique	73
5.2	Force de Bjerknes secondaire par onde de surface	77
5.3	Discussion	81
5.4	Modes de vibration de la surface des bulles	84
5.5	Conclusion	87
6	Conclusions et perspectives	89
6.1	Conclusions	89
6.2	Perspectives	90
A	Etapas de fabrication d'un moule multicouche	93
B	Schémas des différentes ondes acoustiques	95
	Bibliographie	101

Chapitre 1

Introduction

Le travail présenté dans cette thèse est à l'intersection de deux domaines : celui bien connu de l'acoustique et le champ tout récent de la microfluidique. Dans ce chapitre, nous détaillons le contexte de ce travail, concernant l'interaction entre une onde acoustique et une bulle, ainsi que les laboratoires sur puce. Nous présentons ensuite un état de l'art des techniques utilisées en microfluidique et les outils développés pour la micromanipulation. Nous finissons en détaillant les objectifs de cette thèse et le plan de ce document.

1.1 Contexte

1.1.1 Les bulles et l'acoustique

L'interaction entre une bulle et une onde acoustique est étudiée depuis longtemps. En 1906, un scientifique norvégien nommé Bjerknes [1] avait observé une force acoustique très particulière, qui porte son nom aujourd'hui, lorsque les bulles sont excitées à leur fréquence de résonance. Toute onde peut exercer une force de pression de radiation sur un objet, et notamment les ultrasons. Cependant, dû à leur compressibilité, les bulles peuvent entrer en résonance avec ces derniers. Cette résonance a été décrite en détail par Minnaert en 1933 [2], résonance qui porte maintenant son nom. Les particules solides peuvent aussi subir une force acoustique, mais avec une efficacité moindre selon l'étude de Yosioka [3].

Lamb en 1932 [4] a étudié les modes de vibration de la surface des bulles. Lorsqu'elles sont excitées avec une amplitude suffisamment importante, un mode de vibration non radial apparaît qui déforme fortement leur surface. Elles perdent leur symétrie sphérique et prennent alors des formes complexes.

Plus récemment, des études, principalement théoriques et numériques, ont été menées pour généraliser ces résultats à des bulles cylindriques, notamment celles de Prosperetti *et al.* [5] et de Delale *et al.* [6]. Une bulle cylindrique est le modèle d'une bulle confinée entre deux plaques. Celle-ci n'est plus sphérique mais

prend la forme d'une sphère aplatie comme nous le montrons plus loin. L'un des objectifs est de décrire l'effet du confinement, pour ainsi prédire le comportement des bulles face à une onde acoustique à l'intérieur d'un microcanal. Plusieurs modèles prévoient de plus une interaction acoustique des bulles. C'est le cas notamment des études de Leighton [7], Barbat *et al.* [8] et Doinikov [9]. Peu d'observations expérimentales ont été réalisées jusqu'à maintenant.

Un axe de recherche très actif actuellement traite de l'interaction d'une onde acoustique avec des bulles encapsulées, dont une revue a été publiée par Klibanov [10]. Une poche de gaz micrométrique est encapsulée dans un matériau élastique et lui permet de résister un certain temps à la dissolution du gaz dans le liquide environnant. Ces objets, lorsqu'ils sont injectés dans le système sanguin, servent d'agents de contraste lors d'une échographie. En effet, ayant une densité quasiment nulle par rapport aux tissus biologiques voisins, les bulles renvoient un écho important lorsqu'elles reçoivent une onde acoustique. La visualisation de l'écoulement du sang par exemple en est grandement améliorée. De plus, le matériau de la coquille qui encapsule la bulle peut être fonctionnalisé. Certains marqueurs peuvent être inclus sur cette coquille, ce qui permet à la bulle d'aller se fixer sur un certain type de tissus. C'est alors un moyen de détecter des tumeurs ou d'identifier des zones inflammatoires grâce à une simple échographie. La technique de production de ces objets est déjà maîtrisée et plusieurs entreprises les commercialisent, comme Schering, Bracco ou Alliance Pharma.

1.1.2 Les laboratoires sur puce

Un laboratoire sur puce est un dispositif de petite taille (quelques centimètres au plus) ayant des capacités d'analyse d'échantillon identiques à celles d'un laboratoire. Si la technologie n'est pas encore tout à fait au point pour fabriquer ce genre d'appareil, les progrès sont nombreux et donnent l'espoir que ces puces sortiront bientôt des laboratoires de recherche et auront un développement commercial dans les années à venir.

Pour rentrer plus dans les détails, un laboratoire sur puce se présente sous la forme d'un circuit, plus ou moins complexe, de canaux qui sont plus fins qu'un cheveu. La figure 1.1 en est un exemple. Dans ces circuits s'écoulent des fluides qui sont destinés à être analysés. Toutes sortes d'analyses sont faisables. Par exemple, il est possible de compter le nombre de globules rouges dans un échantillon de sang, mesurer la viscosité d'un liquide, étudier sa composition ou le comportement de micro-organismes dans un milieu confiné... A ce stade, ces puces ne peuvent sortir des laboratoires car beaucoup de matériel annexe est nécessaire pour les faire fonctionner et effectuer les analyses. Les scientifiques cherchent aujourd'hui des moyens pour que, à terme, tout soit intégré sur la puce.

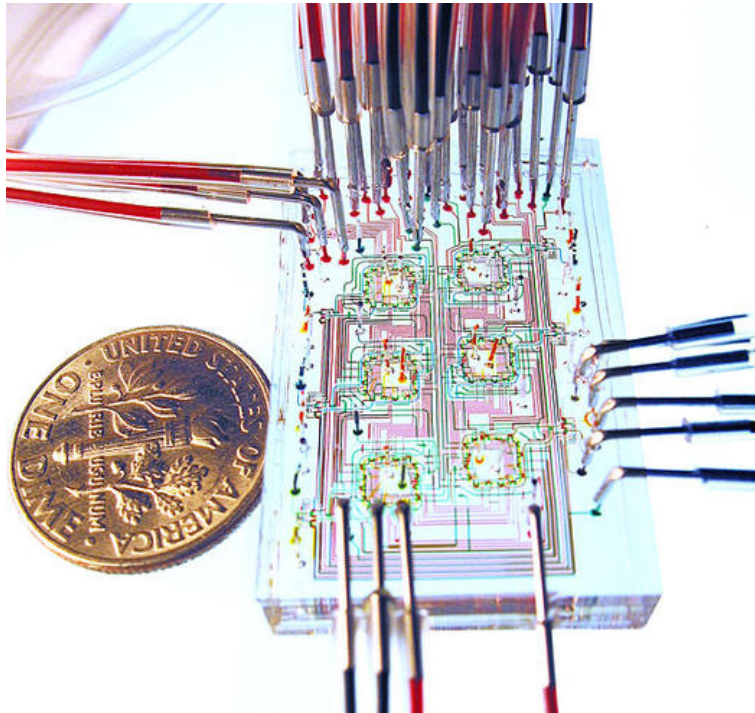


FIGURE 1.1 – Exemple d’un laboratoire sur puce produit dans le groupe de Quake [11].

Pour se rendre compte de l’intérêt de cette miniaturisation, l’analogie peut se faire avec celle des composants électroniques qui ont permis d’augmenter la puissance et la rapidité des machines, menant à la microélectronique et aux ordinateurs multimédia. De la même manière, maniant des quantités infimes de liquide, ces laboratoires sur puce permettront d’effectuer des analyses de façon bien plus précise et rapide. De plus, toutes les analyses nécessaires pour un échantillon pourra se faire sur une seule et même puce si chacune d’entre elles est automatisable. On obtient donc un gain de temps et de précision. Il est possible que, grâce à ces puces, les analyses de sang par exemple, qui peuvent prendre plusieurs jours actuellement, pourront se faire immédiatement et avec une précision bien supérieure, ce qui permettra peut-être une détection accrue des problèmes de santé des patients. Holmes *et al.* [12] ont développé des solutions permettant déjà un comptage des différents constituants du sang.

Ces laboratoires sur puce servent aussi pour la recherche. La miniaturisation des écoulements permet de mieux les contrôler et voir ce qu’il s’y passe. Les observations et les mesures sont relativement aisées. La finesse des canaux permet de reproduire des phénomènes naturels qui ne se passent qu’à de petites échelles. Par exemple, les études sur l’écoulement des globules rouges dans les vaisseaux sanguins utilisent beaucoup ces appareils, par exemple celle de Abkarian *et al.* ([13] et figure 1.2(a)). D’autre part, les études de Raven et Marmottant ([14, 15,

16] et figure 1.2(b)) montrent que les propriétés mécaniques de certains fluides, comme les mousses ont des propriétés très particulières qui ne peuvent être vues qu'à ces échelles.

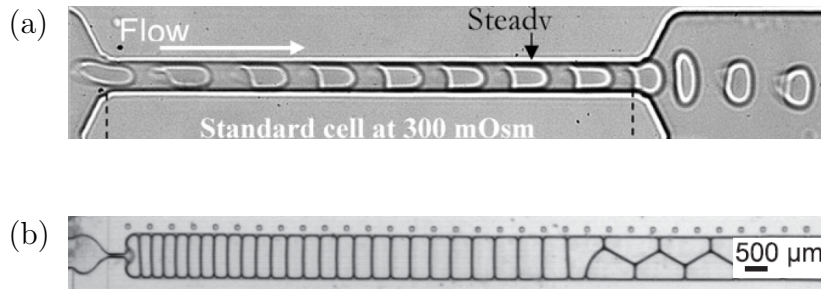


FIGURE 1.2 – (a) Etude de la déformation d'un globule rouge s'écoulant dans un microcanal mimant un vaisseau sanguin [13]. (b) Etude de l'écoulement de mousse bidimensionnelle dans un microcanal [15], l'écoulement exhibe des propriétés non triviales, invisibles à grande échelle.

1.2 Etat de l'art ...

1.2.1 ... de la microfluidique

La microfluidique est la science des écoulements de fluide à l'échelle du micromètre. Elle a pris son essor lors de l'arrivée des techniques de microfabrication. La plus utilisée d'entre elles est la lithographie douce qui a bénéficié de l'émergence de l'utilisation du polydiméthylsiloxane, ou PDMS. En effet, cet élastomère souple, transparent et chimiquement inerte a commencé à être utilisé pour la microfluidique vers la fin des années 1990, notamment par l'équipe de Whitesides [17]. Simple de mise en oeuvre, il permet de mouler fidèlement des motifs nanométriques et d'observer à travers sans aucune difficulté. Cette technique est "douce" comparée à la lithographie "dure" qui utilise des attaques chimiques ou des faisceaux d'électrons pour graver un motif dans un solide. Ici, le moule est fabriqué par la technique de photo-lithographie. Rapide et simple, la fabrication nécessite tout de même du matériel spécialisé et de travailler en salle blanche. Il est ainsi possible de fabriquer des moules très complexes de taille micrométrique en une seule journée. Tout le processus de microfabrication est détaillé dans le chapitre 2.

Certaines limitations existent cependant. Les moules créés ne sont que des couches bidimensionnelles d'une épaisseur constante. Il est possible, mais difficile, à travers des artifices, de faire varier la hauteur sur un même moule et de

fabriquer des objets tridimensionnels. Le PDMS a aussi ses défauts. Naturellement hydrophobe, il n'est pas évident d'y effectuer des expériences en milieu aqueux. Sa souplesse est aussi problématique. A haute pression, le matériau se déforme de façon importante. Ces défauts sont toutes fois mineurs devant les avantages de simplicité et de rapidité d'exécution de cette technique.

Les faibles dimensions des dispositifs microfluidiques sont un atout pour le contrôle de l'écoulement des fluides. Le nombre de Reynolds compare les effets visqueux aux effets inertiels : $Re = hv/\nu$, avec la viscosité cinématique ν et la vitesse de l'écoulement du fluide v , et une dimension caractéristique du système h égale à la hauteur des canaux. Avec un nombre de Reynolds inférieur à 1 grâce aux faibles dimensions des microcanaux, la viscosité domine. Les liquides s'écoulent de façon laminaire. Il n'y a pas de turbulence ou de zone de recirculation. Les lignes d'écoulement sont régulières et complètement prédictibles. Tout ceci mène à une reproductibilité importante, sans fluctuation dans les écoulements.

La production de goutte ou de bulle dans les microcanaux amène la notion de microfluidique digitale. Elle a été introduite en 2003 par Paik *et al.* [18]. Au lieu d'analyser un fluide en continu, l'idée est de le fragmenter en goutte pour pouvoir en manipuler et en analyser une quantité bien définie. Chaque goutte, ou chaque bulle peut être considérée comme un petit réacteur dans lequel effectuer des réactions pour analyser les compositions des fluides. Plusieurs de ces réactions peuvent être pratiquées en parallèle sur une même puce.

Plusieurs techniques ont été développées pour produire ces microémulsions. La première est de faire s'écouler deux liquides dans deux canaux concentriques (figure 1.3(a) et [20]). Si les deux liquides ne sont pas miscibles, celui qui s'écoule au centre se casse en gouttes qui sont alors transportées par le deuxième liquide. La variation des débits permet de contrôler la taille des objets créés. Les facteurs géométriques sont la taille et la forme de chaque tube. Pour réaliser cette méthode, il faut glisser un tube dans un autre plus large. Les dimensions ne peuvent pas être diminuées jusqu'au micromètre et le dispositif est alors difficilement intégrable sur une puce.

La deuxième méthode est celle de la jonction en T (figure 1.3(b) et [21]). C'est la première à bénéficier des méthodes de lithographie et elle est probablement la plus reproduite à ce jour. L'écoulement de deux liquides non miscibles se croisent à une jonction en forme de T. La phase qui mouille le moins les parois des canaux se cassent en goutte. Le rapport des débits des deux liquides déterminent la taille des gouttes produites. Etant fabriqués par photolithographie, les canaux sont de section rectangulaire. Les variables géométriques sont donc seulement la largeur de chaque branche de la jonction. Le rapport de la largeur des deux entrées est important, il définit deux régimes de formation des gouttes : par tension de surface

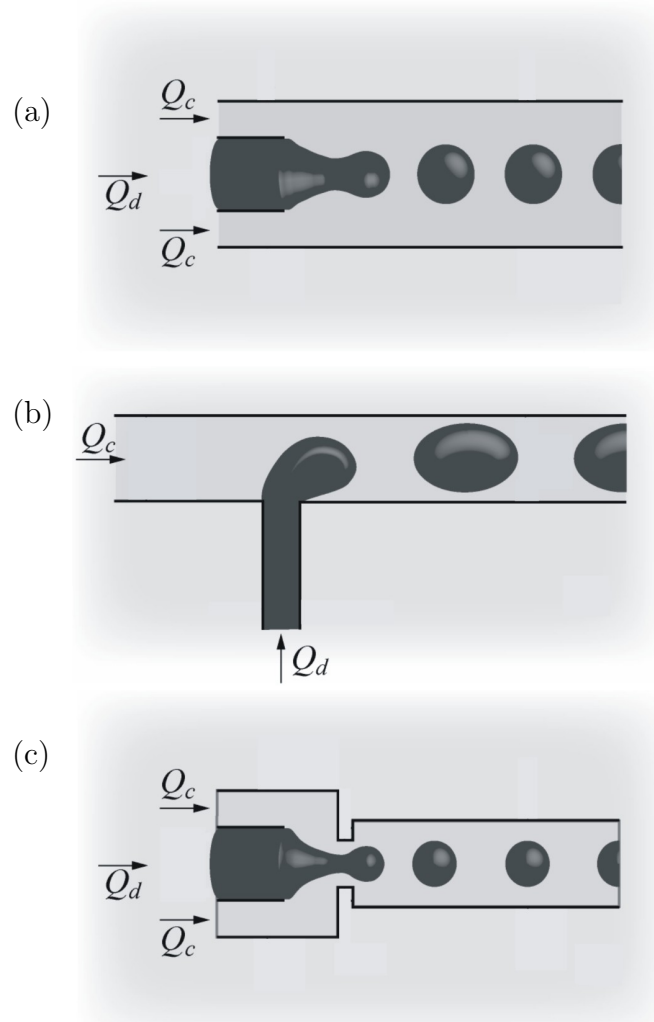


FIGURE 1.3 – Les 3 méthodes de production de goutte (a) 2 écoulements coaxiaux, (b) la jonction T, (c) la focalisation d'écoulement. Q_c est le débit de la phase continue et Q_d celui de la phase dispersée. Schémas tirés de la revue de Christopher *et al.* [19].

si la goutte est petite par rapport à la largeur du canal, ou par augmentation de la pression si elle est suffisamment grande pour boucher ce dernier.

Enfin, la dernière technique est celle de la focalisation d'écoulement ou *flow-focusing* en anglais (figure 1.3(c) et [22]). Il s'agit de la technique utilisée dans notre étude. Le principe est de faire s'écouler les deux liquides à travers un petit orifice, le liquide de la phase continue venant par les côtés, l'autre étant au centre. Lorsque celui du milieu passe et forme la goutte, il bouche l'orifice empêchant le deuxième liquide de s'écouler. Celui-ci s'accumule en amont et pince le jet jusqu'à le couper. Une goutte est alors relâchée. Les débits des deux liquides, mais aussi la longueur et la largeur de l'orifice sont les paramètres de contrôle pour la génération des émulsions.

1.2.2 ... de la micromanipulation

Lorsque les bulles ou les gouttes sont produites, il est intéressant de pouvoir les manipuler au sein d'une puce microfluidique constituée d'un réseau complexe de microcanaux. Contrôler leur trajectoire permet de les amener dans telle ou telle partie du circuit où elles vont subir diverses réactions pour être analysées. Plusieurs outils sont en développement utilisant des principes différents pour appliquer une force externe sur les objets en écoulement dans les microcanaux.

Diélectrophorèse

La diélectrophorèse permet de déplacer des particules solides ou des cellules biologiques dans un liquide grâce à un gradient de champ électrique alternatif [23] et se basant sur la différence de constante diélectrique entre deux milieux. La force dépend de la taille des particules, mais aussi de leur forme et de leur polarisabilité. Elle dépend aussi directement du gradient du carré du champ électrique qui peut être important à des échelles micrométriques.

Une possibilité pour moduler spatialement le champ électrique à tout moment est d'utiliser un substrat photoconducteur. En projetant dessus une image d'une certaine forme, ce genre de matériau devient conducteur aux endroits éclairés et des potentiels avec des formes complexes peuvent être ainsi produits assez facilement [24].

L'avantage ici est de pouvoir séparer toutes sortes de particule en suspension selon leur taille et leur forme, et leur constante diélectrique. L'inconvénient est l'échauffement des échantillons dû à des amplitudes de champ importantes.

Il ne faut pas confondre cette méthode avec l'électrophorèse qui fonctionne avec un champ électrique constant et uniquement sur des particules chargées [25]. Un autre phénomène très proche est l'électro-mouillage, très utile pour déplacer des gouttes ([26] et figure 1.4). En appliquant un champ électrique à travers la goutte, sa tension de surface avec le support est modifiée et on l'oblige ainsi à s'étaler ou à se contracter. Cette technique est compatible avec les dispositifs

microfluidiques, bien qu'elle nécessite une alimentation électrique non intégrable sur une puce.

Magnétophorèse

Une variante de la diélectrophorèse est d'utiliser des champs magnétiques. On parle alors de magnétophorèse ([23, 27] et figure 1.5). Basée sur les perméabilités magnétiques des différents milieux, la méthode fonctionne pour des objets dia- et paramagnétiques, normalement peu sensibles aux champs magnétiques. Ce paramètre variant peu d'un matériau à un autre, cette technique ne permet pas de trier les objets selon leur propriété magnétique. L'intensité de la force est proportionnelle au gradient du carré du champ, qui peut être important à des échelles de l'ordre de la dizaine de micromètres. L'avantage ici est d'utiliser des aimants permanents. Aucune alimentation électrique n'est nécessaire pour piéger des particules. L'inconvénient est que l'amplitude et la forme du potentiel magnétique ne peuvent être modulées à volonté une fois la puce fabriquée.

Optophorèse

La lumière peut appliquer deux types de force non négligeables sur des objets micrométriques : la pression de radiation lumineuse et une force de gradient. Si la première ne fait que pousser les objets dans la direction de propagation des rayons lumineux, la deuxième peut piéger toutes sortes de particules si le gradient du champ électro-magnétique est suffisamment important. C'est le principe de la pince optique, découvert par Ashkin en 1970 [28]. Il est basé sur la différence de l'indice optique des objets à manipuler avec le milieu environnant. Cette technique est très modulable, il suffit de focaliser un faisceau laser sur la particule à piéger. Cependant, elle ne différencie que très peu les matériaux de différents indices optiques. L'inconvénient majeur ici est qu'elle n'est pas utilisable pour un laboratoire sur puce, nécessitant un laser et un microscope pour focaliser le faisceau. Une variante a été développée intégrant un guide d'onde optique dans un substrat [29]. Les particules sont piégées et poussées sur ce guide comme sur un rail (figure 1.6). Le faisceau laser peut aussi être mis en forme par des méthodes d'holographie pour pousser, ralentir et manipuler des gouttes par des effets thermo-capillaires [30].

Acoustophorèse

Plusieurs principes de manipulation grâce à des ondes acoustiques existent. Les liquides peuvent subir le phénomène de l'*acoustic streaming*. Les ultrasons sont atténués lorsqu'ils se propagent dans l'eau. Cette atténuation se traduit par un transfert de quantité de mouvement, ce qui a pour résultat de mettre le liquide en écoulement [32]. La vitesse de cet écoulement peut atteindre plusieurs dizaines de millimètres par seconde.

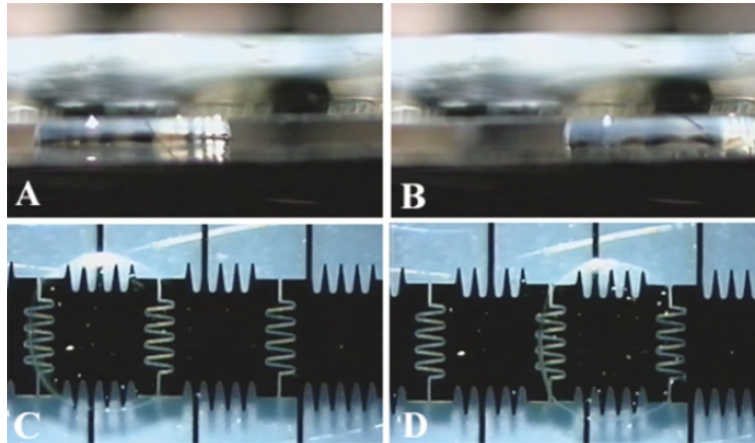


FIGURE 1.4 – Manipulation d'une goutte confinée dans une cellule microfluidique grâce à l'électro-mouillage [26].

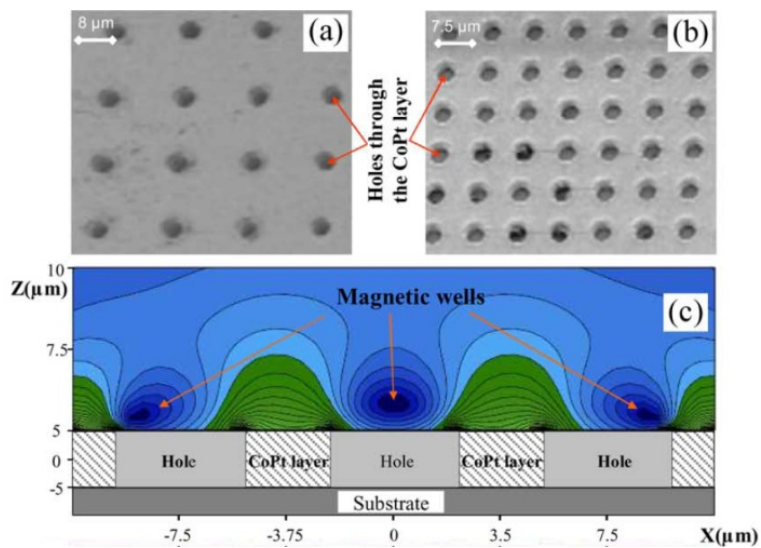


FIGURE 1.5 – Dispositif expérimental d'une puce utilisant la magnétophorèse pour piéger des particules [27].

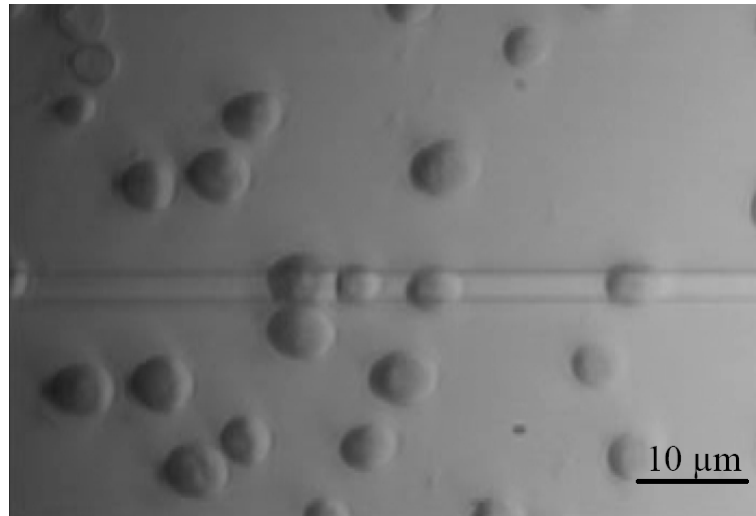


FIGURE 1.6 – Manipulation de bactérie par piégeage optique sur un guide d’onde [29].

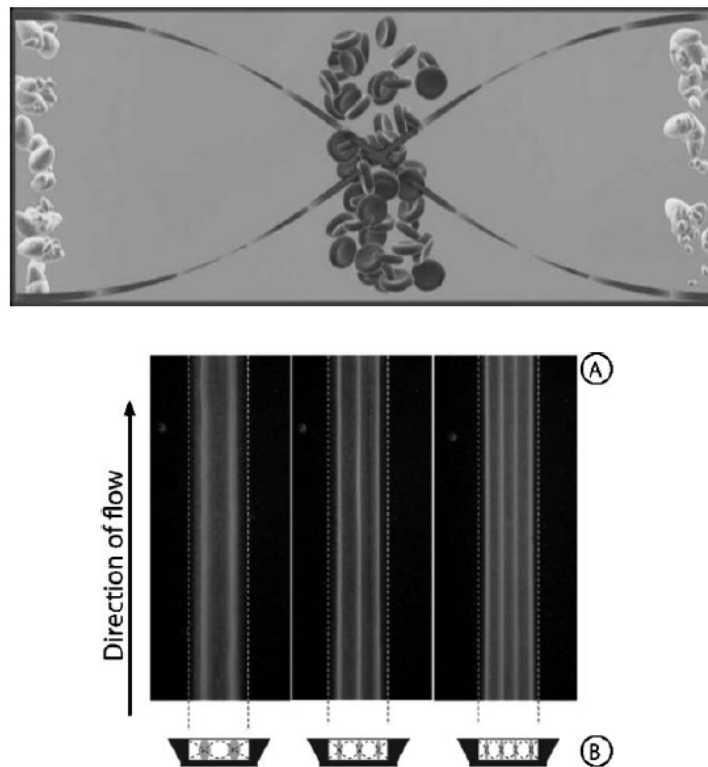


FIGURE 1.7 – Séparation de globules rouges et de particules lipidiques par onde acoustique stationnaire [31].

L'autre possibilité est d'utiliser la pression de radiation. Si l'impédance acoustique (définie par la densité et la vitesse des ondes acoustiques) ou la compressibilité du matériau sont suffisamment différentes de celles du milieu environnant, l'objet subit une pression de radiation [3]. Usuellement, dans le cas d'une onde stationnaire, cette force pousse les objets vers les noeuds de pression. Dans certaines conditions, il peut se passer l'inverse et les objets sont alors attirés par les endroits de plus forte pression. Ceci permet de trier les objets selon leurs propriétés mécaniques. Par exemple, Laurell *et al.* ([31] et figure 1.7) montrent qu'il est possible de séparer les particules lipidiques des globules rouges dans le traitement d'un échantillon de sang, et Kapishnikov *et al.* [33] séparent des particules de différentes tailles. L'autre avantage est que les émetteurs d'onde acoustique sont miniaturisables et intégrables sur une puce. Le défaut est la faible amplitude de ces forces.

Enfin, Wu [34] et Lee *et al.* [35] ont étudié de façon théorique la faisabilité de la pince acoustique. Sur le même principe de la pince optique, l'idée est d'utiliser la diffraction des ondes par un objet pour induire une force qui piège la particule dans un puits de potentiel. Une seule étude expérimentale a été testée avec beaucoup de limitations techniques [34]. L'avantage est de pouvoir manipuler un objet de façon individuel. Le problème est qu'il doit avoir des propriétés acoustiques bien spécifiques, très proches de celles du milieu environnant, et la technique est alors très limitée.

1.3 Objectifs et plan de la thèse

Le phénomène de résonance des bulles, bien que connu, est peu étudié, notamment pour des bulles confinées. De plus, si des théories existantes prévoient une interaction acoustique entre bulles, peu d'études expérimentales ont été menées. Nous proposons lors de cette thèse de revenir sur ces deux phénomènes qui méritent d'être approfondis, particulièrement pour analyser l'effet du confinement. Pas seulement d'un point de vue fondamental, cette thèse aborde l'aspect applicatif. Des exemples d'utilisation des forces acoustiques appliquées sur les bulles sont imaginées et mises en oeuvre pour les laboratoires sur puce. Le principe de manipulation par onde acoustique est peu développé. Nous espérons ainsi par ce travail démontrer et faire connaître le potentiel des ultrasons comme un véritable outil de micromanipulation.

Dans le chapitre 2, nous donnons dans une première partie une description du procédé de fabrication des microcanaux, agrémentée de remarques sur son optimisation, ainsi que son adaptation que nous avons élaborée pour fabriquer des moules avec plusieurs couches. Dans une deuxième partie, nous commençons par détailler la géométrie des canaux que nous utilisons pour la génération de microbulles et de microémulsions. Nous expliquons ensuite par quel moyen original

nous appliquons une force externe bien connue qu'est la force de gravité sur les bulles à l'intérieur des canaux pour étudier par la suite leur écoulement, ainsi que la méthode que nous mettons en oeuvre pour intégrer un émetteur d'ultrasons dans le dispositif microfluidique. Nous finissons ce chapitre par donner en détails les paramètres de contrôle des diverses expériences que nous menons dans cette étude, puis les méthodes de visualisation et de mesure utilisées.

Dans le chapitre 3, nous exposons d'abord notre étude sur la génération des doubles émulsions avec le dispositif décrit dans le chapitre précédent. Nous verrons plus loin que la production de ces objets est nécessaire à une application des forces acoustiques. Ensuite, nous analysons la façon dont une bulle s'écoule dans un microcanal en détaillant les forces de traînée et de friction. Dans un premier temps, nous nous inspirons de théories partielles existantes pour élaborer notre propre modèle fonctionnant dans les conditions de nos expériences, puis nous exposons la vérification et la calibration expérimentale de ce modèle. Nous discutons pour finir la signification des valeurs numériques trouvées des différents paramètres d'ajustement. Cette modélisation de l'écoulement des bulles dans les microcanaux nous est utile par la suite pour déterminer l'amplitude des forces externes appliquées.

Dans le chapitre 4, nous exposons dans une première partie notre étude théorique et nos mesures expérimentales sur la force de Bjerknes, la force acoustique appliquée à la résonance des bulles. Cette étude est rendue possible par la modélisation de l'écoulement des bulles effectuée dans le chapitre précédent qui permet de mesurer l'amplitude des forces appliquées. Nous montrons dans une deuxième partie les applications pour les laboratoires sur puce que nous développons : le tri en taille, la division asymétrique contrôlée et l'aiguillage automatique, et la manipulation de goutte. Nous sommes en mesure de développer cette dernière application grâce au travail mené dans le chapitre précédent.

Le chapitre 5 traite de l'interaction des bulles lorsqu'elles sont excitées par un champ acoustique. Nous décrivons d'abord l'auto-arrangement des bulles en un motif périodique observé dans nos expériences lorsque les bulles sont suffisamment proches les unes des autres. Nous élaborons ensuite un modèle à partir de la force de Bjerknes étudiée au chapitre précédent pour décrire efficacement ces observations. Puis nous comparons notre modèle avec ceux existants concernant les interactions de bulles sous champ acoustique. Ces comparaisons nous amène à mettre en avant certains ingrédients essentiels dans nos expériences qui nous ont permis d'observer pour la première fois cette auto-organisation, décrite plusieurs fois théoriquement mais jamais observée expérimentalement. Enfin, nous exposons nos observations des modes de vibration de la surface des bulles qui surviennent à plus haute amplitude et nous les comparons aux modèles théoriques existants.

Nous finissons dans le chapitre 6 par résumer les principaux résultats et ouvrir des perspectives.

Chapitre 2

Matériel et méthodes

L'objectif de ce chapitre est d'exposer les moyens que nous nous sommes donnés pour mener à bien notre étude. Cela passe par une description des techniques de microfabrication généralement utilisées en microfluidique, mais aussi par leur adaptation à nos besoins que nous avons élaborée, notamment la technique des moules multicouches qui permet d'obtenir des microcanaux à hauteur variable. L'étude de la vibration d'un barreau en verre qui sert de guide d'onde, ainsi que son intégration dans le dispositif microfluidique sont exposées ici.

Nous décrivons dans une première partie la technique de microfabrication que nous utilisons pour produire les microcanaux : la photo-lithographie classique, son adaptation pour produire des moules multicouches, et la lithographie douce avec l'utilisation du PDMS. Dans une deuxième partie, nous exposons la géométrie générale des microcanaux que nous avons réalisée pour produire des microbulles et des microémulsions, puis nous expliquons comment sont menées les expériences sous force de gravité puis sous champ acoustique. Nous détaillons enfin les paramètres de contrôle des expériences et les méthodes de visualisation et de mesure.

2.1 Fabrication des microcanaux

Nous exposons ici la technique de photo-lithographie pour fabriquer les moules, puis la lithographie douce pour fabriquer les canaux microfluidiques. Elles sont relativement simples et rapides à mettre en oeuvre. Nous rappelons dans un premier temps les différentes étapes de la fabrication d'un moule micrométrique, pour pouvoir détailler ensuite la technique des moules multicouches nécessaires à la production des doubles émulsions. Nous exposons enfin l'utilisation du PDMS pour mouler les microcanaux avec l'utilisation d'un plasma d'air puis d'oxygène pur pour les sceller.

2.1.1 Photo-lithographie : fabrication du moule

La production du moule nécessite plusieurs étapes qui sont réalisées en salle blanche. Elles sont, dans l'ordre d'exécution : étalement de la résine sur une plaque de silicium, première cuisson, exposition aux rayons ultraviolets, deuxième cuisson, développement, recuit. Toutes ces étapes sont illustrées par la figure 2.3. Les éléments nécessaires pour cette fabrication sont une plaque de silicium, de la résine photosensible et un masque transparent.

Les plaques utilisées sont faites en silicium (Siltronix). Deux tailles de 2 et 3 pouces de diamètre sont utilisées selon les besoins, avec une épaisseur de 0,5 mm. Elles sont livrées dans une boîte étanche qui n'est ouverte qu'en salle blanche. Elles sont suffisamment propres pour ne pas nécessiter de traitement préalable. Elles sont simplement déshydratées 5 minutes à 250°C. Elles sont ramenées à température ambiante avant d'être utilisées.

Tous les moules ont été réalisés avec de la résine négative SU-8 (Gersteltec). C'est une résine époxy (Novolac phenol epoxy resin, figure 2.1(a)) diluée dans un solvant (Gamma Butyrolactone, figure 2.1(b)). Cette résine sous sa forme réticulée a une excellente résistance chimique et à la température. Plusieurs versions existent avec différentes viscosités, et donc différentes gammes d'épaisseurs accessibles. Les versions GM1060 et GM1070 ont été utilisées pour des épaisseurs respectivement entre 5 et 50 μm et entre 15 et 200 μm . Le protocole d'utilisation fourni par le fabricant est résumé ici, accompagné de remarques pour optimiser leur utilisation.

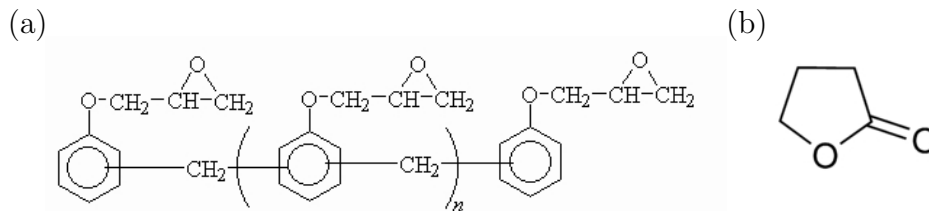


FIGURE 2.1 – Molécules de (a) la résine époxy et (b) du solvant.

Les masques sont des transparents plastiques sur lesquels sont imprimés, avec une grande résolution (de 5000 à 25 400 dpi), le motif désiré. Utilisant une résine négative, le motif doit être transparent car ce sont les zones exposées qui sont polymérisées et qui restent après l'étape de développement. Plusieurs fabricants de masques ont été testés. Xyrius (Seyssins) est un imprimeur local et permet d'avoir les masques très rapidement, sous deux jours. Mais à cause d'un problème de granulométrie des transparents (figure 2.2(a)) qui se retrouvent sur le moule, un autre imprimeur a été choisi. Les masques Selba (Suisse) (figure 2.2(b)) sont de meilleure qualité, de plus grande résolution, mais avec un délai de fabrication et de livraison d'une semaine.

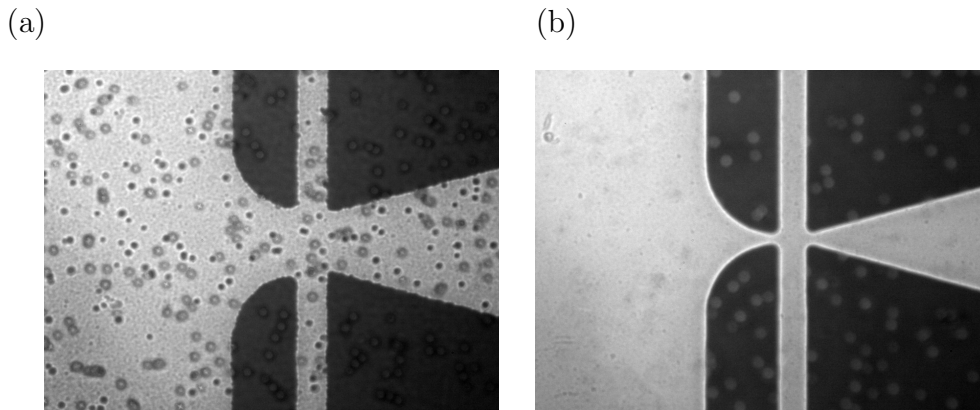


FIGURE 2.2 – Photos de masques. (a) imprimeur Xyrius avec une largeur de l’orifice de $100\ \mu\text{m}$. (b) imprimeur Selba avec une largeur de l’orifice de $25\ \mu\text{m}$. Voir la section 2.2.1 pour les détails sur la géométrie des canaux.

Etalement

Deux étapes sont effectuées pour l’étalement. Une première consiste à répartir au mieux la résine sur toute la plaque. En penchant la plaque à la main dans un premier temps, puis en faisant tourner la plaque sur elle-même pendant 10 secondes à 500 tours/min. Les accélérations sont toujours limitées à 100 tours/min². Cette étape peut être répétée plusieurs fois si nécessaire. Lors de la deuxième étape, la plaque est mise en rotation à des vitesses entre 900 et 4100 tours/min. Cette vitesse, ainsi que la viscosité du liquide, détermine l’épaisseur du film de résine qui adhère sur la plaque. Le surplus est évacué par centrifugation. Cette épaisseur sera par la suite l’épaisseur du moule et donc la hauteur du microcanal.

Première cuisson

Cette étape consiste à faire évaporer le solvant pour rendre la résine solide. Deux plateaux de température sont nécessaires à 65°C puis 95°C . Des gradients de température trop forts induisent des déformations importantes dans la couche de résine. De fortes ondulations sur la surface peuvent apparaître. Il est donc nécessaire de respecter des rampes de température de l’ordre de $2^\circ\text{C}/\text{min}$. Tout le solvant doit être évaporé pour que la résine soit suffisamment durcie pour être manipulée. Typiquement, cette opération prend entre 1 et 3 heures selon l’épaisseur.

Exposition

La plaque est placée dans l’exposeur (KarlSuss, MJB3) sous le masque. La résine sous les zones transparentes du masque sont exposées aux UV (longueur

d'onde 365 nm). Ceci permet d'initier des réactions de réticulation. Les molécules de résine se lient entre elles par des réactions chimiques créant des liens covalents, ce qui leur permet d'être beaucoup plus stables et résistantes chimiquement que les molécules de résine non exposées. Un système mécanique dans l'exposeur vient mettre en contact la plaque et le masque. Ceci permet aux rayons UV ne pas être diffractés par le masque et de rester bien parallèles avant d'atteindre la résine. Lorsque cette condition n'est pas respectée, la précision du motif en pâtit et les murs normalement verticaux apparaissent obliques. Il faut aussi prendre garde de mettre la face imprimée du masque, celle où l'encre est déposée, en contact avec la résine, ceci pour encore optimiser la distance motif imprimé - résine. Un temps d'exposition trop grand ou trop petit rendent le motif imprécis. Des tests ont montré des temps optimaux (selon la puissance de notre lampe de 3,1 mW/cm²) allant de 50 secondes pour 6 μ m d'épaisseur jusqu'à 170 secondes pour 50 μ m.

Deuxième cuisson

Cette deuxième cuisson permet d'accélérer les réactions de réticulation. Le profil des changements de température reste le même que lors de la première cuisson, avec des durées de plateau légèrement différentes. Cette étape prend entre 1 et 2 heures.

Développement

La plaque est plongée dans le développeur, un bain de PGMEA (Propylène-GlycolMethylEtherAcetate). La résine non exposée est dissoute et le motif exposé est révélé. Le temps que la plaque doit passer dans le bain est très variable. Il dépend du motif, de l'épaisseur, mais aussi de la qualité du développeur car il est réutilisé de nombreuses fois. Un premier bain permet d'enlever la plus grosse partie de la résine. Un deuxième bain est prévu avec du développeur moins utilisé, plus propre pour affiner l'opération. Les temps typiques sont de l'ordre de 2 à 10 minutes dans le premier bain, et 1 à 3 minutes dans le deuxième. Trop développer pose le risque du décollement du motif. Le moule est ensuite rincé à l'isopropanol puis séché.

Recuit

Cette étape n'est pas obligatoire mais a été systématiquement effectuée. Elle permet de gommer certaines craquelures présentes sur la surface du motif à la fin du processus de fabrication. Il faut cuire le moule à 135°C pendant 2h.

2.1.2 Protocole pour un moule multicouche

Pour les expériences avec les doubles émulsions, il est nécessaire d'avoir des canaux de hauteurs différentes sur la même plaque (voir la section 2.2.1). Il faut

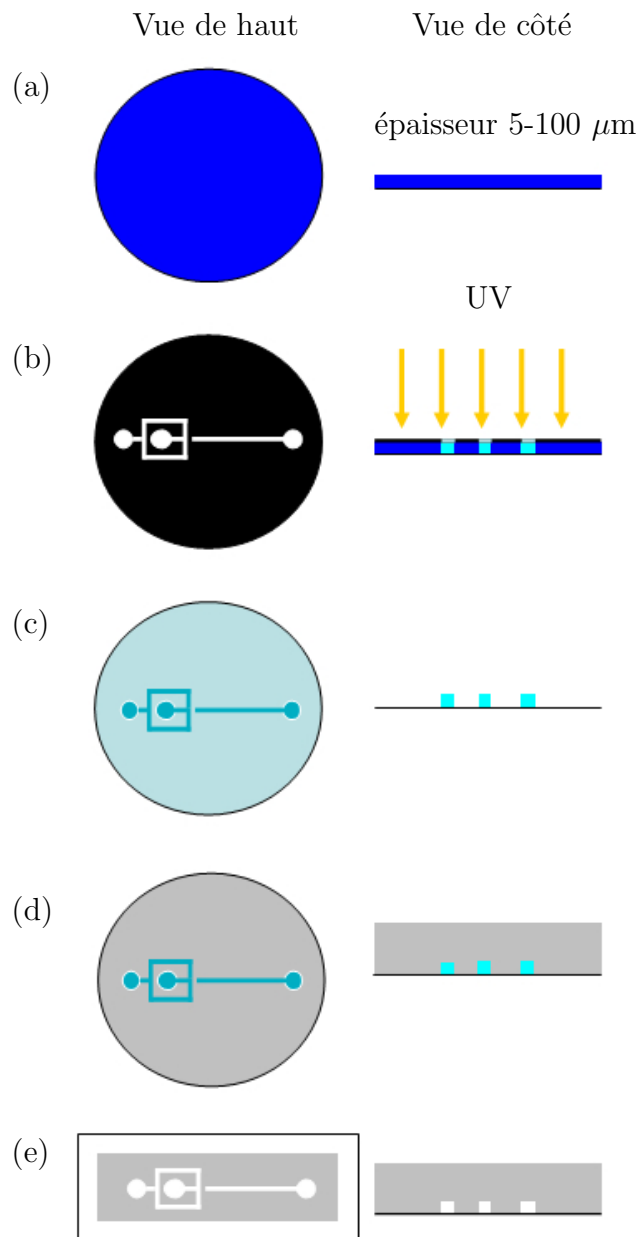


FIGURE 2.3 – Schéma décrivant le procédé de microfabrication, tiré de la thèse de Raven [14]. (a) Une fine couche (entre 5 et 100 μm) de résine photosensible est étalée sur une plaque de silicium par centrifugation, puis durcie par cuisson. (b) La plaque est exposée aux rayons UV à travers un masque contenant le dessin du système microfluidique. (c) Les zones de résine non exposées sont dissoutes pendant la phase de développement. Le motif apparaît alors en relief. (d) L’empreinte est moulée avec du PDMS. (e) Les canaux en PDMS sont retirés du moule et sont scellés en les collant sur une lame de verre ou un support en PDMS.

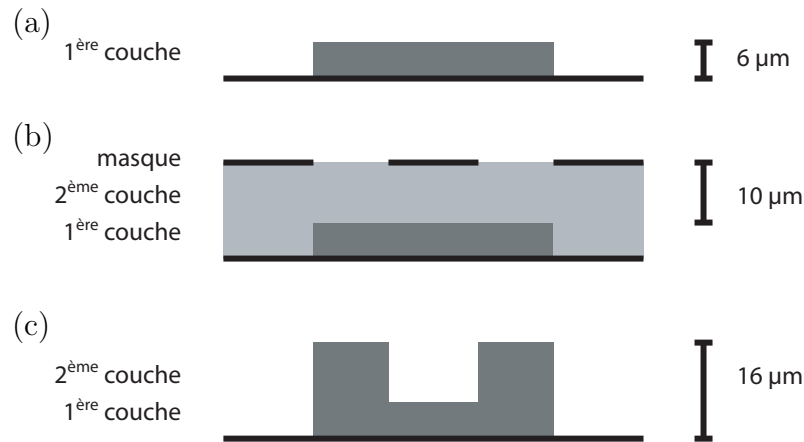


FIGURE 2.4 – Schéma décrivant la méthode de fabrication des moules multicouches ; en gris clair la résine durcie mais non exposée aux UV, en gris foncé la résine réticulée. (a) La première couche est fabriquée avec une épaisseur de $6\ \mu\text{m}$. (b) Une couche de $16\ \mu\text{m}$ de résine est étalée pour obtenir une épaisseur de $10\ \mu\text{m}$ au dessus de la première couche, et le masque est aligné sur le motif déjà exposé. (c) Après développement, nous obtenons des zones avec des hauteurs de 6 et $16\ \mu\text{m}$.

alors recourir à la technique des moules multicouches. Dans notre cas et pour illustrer le procédé ici, 2 couches sont faites avec des épaisseurs de 6 et $30\ \mu\text{m}$. La figure 2.4 illustre le principe de fabrication et le tableau de l'annexe A donne en détails toutes les étapes à suivre.

D'abord, la première couche est fabriquée comme indiqué dans la section 2.1.1 jusqu'au développement, et pour une épaisseur de $6\ \mu\text{m}$. La couche suivante est fabriquée avec une épaisseur et un masque différents en suivant le même protocole. Le point délicat est d'aligner parfaitement, avant l'exposition aux rayons UV, le masque de cette deuxième couche avec le motif de la première. En effet, après l'étalement de la résine de la deuxième couche, la première se retrouve sous une certaine épaisseur de résine, comme le montre le schéma de la figure 2.4(b). Si cette épaisseur est trop importante, le motif de la première couche apparaît flou au microscope et son alignement avec le nouveau masque est d'autant plus difficile. En se limitant à des épaisseurs maximales de $10\ \mu\text{m}$, le premier motif déjà développé apparaît sous la deuxième couche suffisamment clairement pour pouvoir effectuer un alignement correct. Nous pouvons ainsi obtenir des zones d'épaisseurs différentes sur une même plaque, par exemple 6 et $16\ \mu\text{m}$ sur la figure 2.4(c). De plus, deux détails techniques sont essentiels pour assurer une bonne qualité du moule. D'abord, le masque et la plaque doivent être parfaitement en contact. Si ce n'est pas le cas, les rayons UV sont diffractés et les plus petits motifs, de 10 micromètres et moins, disparaissent après le développement.

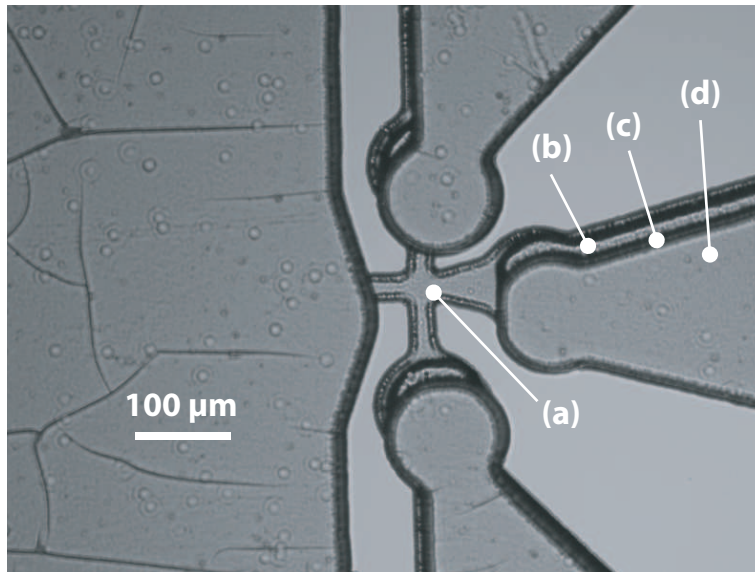


FIGURE 2.5 – Photo d’un moule avec une première couche de $6\ \mu\text{m}$ d’épaisseur (a), puis 3 couches de $8\ \mu\text{m}$ (b), (c) et (d). Les couches (b) et (c) ne sont pas parfaitement alignées, contrairement aux couches (c) et (d) qui se confondent.

Ensuite, aucune vibration n’est permise une fois l’alignement fait et jusqu’à ce que l’exposition soit réalisée. Notre exposeur comporte une partie mécanique qui provoque, en s’avancant au-dessus de la plaque, un choc important juste avant l’exposition. Cette pièce doit être retenue à la main pour éviter ce choc et perdre l’alignement.

Pour avoir une deuxième couche avec une épaisseur plus importante, ici nous avons besoin de $30\ \mu\text{m}$, il faut la faire en 3 parties, c’est-à-dire superposer 3 couches de $8\ \mu\text{m}$ par-dessus la première. La figure 2.5 est une photo d’un moule fabriqué avec ces épaisseurs. De légers défauts d’alignement peuvent être observés mais ils ne gênent pas le moulage effectué par la suite.

Il y a un autre avantage à limiter l’épaisseur des couches. Plus cette épaisseur est importante, plus le motif bave en dehors du masque. Les traits noirs présents sur les bords des motifs sont des murs non verticaux. Par exemple, sur la photo de la figure 2.5, les couches de $10\ \mu\text{m}$ bavent sur $13\ \mu\text{m}$ en dehors du motif présent sur le masque. Alors que pour celle de $6\ \mu\text{m}$, le trait noir ne mesure que $5\ \mu\text{m}$ de large. Nous augmentons donc la précision des bords en limitant l’épaisseur des couches de résine. Un test a été effectué sans l’étape de développement entre les différentes couches. Le motif du moule ainsi produit a bavé sur plus de $50\ \mu\text{m}$. Le manque de précision ici est équivalent à une seule couche de $24\ \mu\text{m}$ d’épaisseur. L’étape de développement entre chaque couche est donc nécessaire.

2.1.3 Lithographie douce : utilisation du PDMS

Le moule est une empreinte en relief, c'est un négatif. Il reste alors à le mouler pour obtenir le microcanal en "creux". Ceci est fait en 2 étapes : moulage de l'empreinte avec du PDMS, puis collage sur un support pour fermer le canal.

Moulage de l'empreinte

Le PDMS se présente sous une base liquide très visqueuse qui est mélangée à un produit réticulant. Le rapport est en général de 1 masse de réticulant pour 10 masses de base. Le produit réticulant va réagir avec les chaînes de polymère pour créer des ponts et les lier, solidifiant le tout. En faisant varier ce rapport, le nombre de ponts et donc la dureté de la matrice de polymère change. Selon Fuard *et al.* [36], le module d'Young du PDMS peut ainsi varier de 0,2 à 4 MPa selon la concentration de réticulant. Après être passé quelques minutes sous un vide primaire pour enlever les bulles créées lors du mélange manuel, le PDMS est versé sur le moule en prenant garde de ne pas y introduire de nouvelle bulle. Les réactions de réticulations sont accélérées en cuisant le tout pendant 1 heure à 65°C. Il faut ensuite découper la partie contenant le motif avec un scalpel et percer les trous d'entrée et de sortie du système microfluidique avec un poinçon.

Collage sur un support

Le moulage de l'empreinte doit maintenant être fermé pour rendre le microcanal utilisable. Deux solutions sont possibles : coller la pièce de PDMS sur une lame de microscope en verre ou sur un support plan en PDMS. Dans les deux cas, les surfaces qui sont mises en contact doivent être parfaitement propres.

Dans un premier temps, les poussières et les copeaux de PDMS venant de la découpe sont retirés grâce à une bande adhésive. Une seule poussière de quelques dizaines de micromètres peut suffire à boucher un microcanal. Lorsque le collage se fait sur une lame de verre, celle-ci est nettoyée d'abord avec de l'eau savonneuse puis rincée avec de l'éthanol.

Dans un deuxième temps, les surfaces doivent être activées pour permettre des réactions les liant de façon robuste. Ceci est réalisé avec une nettoyeuse à plasma (Harrick Plasma). La chambre dans laquelle est introduit le canal et le support (verre ou PDMS) est mis sous vide jusqu'à 0,2 mbar. Un champ électromagnétique radiofréquence (8-12 MHz), créé par une bobine, vient ioniser les molécules d'air restantes. Une couleur violette émane alors du plasma. Les ions oxygène percutent les surfaces de PDMS et transforment des groupes -O-Si-CH₃ en Si-OH. Lorsque les deux surfaces sont mises en contact, des liens s'établissent entre ces derniers et les groupes SiO₂ du verre, ou avec les mêmes groupes de l'autre surface de PDMS. Ces liens, -Si-O-Si-, sont covalents, très résistants et irréversibles, comme l'expliquent Duffy *et al.* [17]. De plus, certains groupes qui ne se lient pas restent

libres sur les surfaces et participent à rendre le PDMS hydrophile [17]. C'est une caractéristique, très intéressante mais transitoire (typiquement quelques heures), qui peut être recherchée dans certains cas.

Cette étape est assez délicate car elle manque de reproductibilité. Un temps optimal de traitement sous plasma a été fixé à 40 secondes à basse puissance (6,8 W). Moins longtemps, il y a moins de groupes réactifs sur les surfaces et le collage est d'autant moins efficace. Plus longtemps et les surfaces se chargent électriquement et se repoussent. De plus, la qualité de l'air joue possiblement un rôle. En effet, la température et l'humidité sont deux paramètres qui ne sont pas contrôlés. De plus, les réactions de liaisons covalentes prennent du temps à s'établir et peuvent être accélérées en chauffant, par exemple 1 heure au four à 65°C. Mais cette étape supplémentaire accélère aussi le retour du caractère hydrophobe du PDMS. Une autre possibilité utilisée souvent ici est de remplir le canal avec de l'eau immédiatement après le traitement au plasma pour conserver le caractère hydrophile, mais de n'utiliser le canal qu'une dizaine d'heures plus tard pour assurer un collage suffisant.

Collage avec un plasma d'oxygène

Pour les expériences de double émulsion, le caractère hydrophile des parois des microcanaux est très important. La méthode décrite au paragraphe d'avant n'étant plus suffisante, une autre méthode utilisant un plasma d'oxygène pur est utilisée. Bien que plus compliquée à mettre en oeuvre, cette méthode est la plus utilisée car elle procure plusieurs avantages. La densité des groupes Si-OH sur les surfaces de PDMS semble plus importante car le caractère hydrophile est plus prononcé, et le collage en est grandement amélioré. De telle sorte que l'utilisation du canal peut se faire dans l'heure qui suit le collage, bien avant le retour de l'hydrophobicité naturelle du PDMS. Une étude de Bodas [37] a effectivement montré une plus grande densité des groupes OH à la surface du PDMS après traitement au plasma d'oxygène menant à une stabilité plus importante de l'hydrophilicité. Il a été observé une variation de l'angle de contact d'une goutte d'eau de 10° à 110° sur une période de 2 jours.

Dans un premier temps, il faut purger les lignes de gaz en laissant s'écouler l'oxygène dans les tuyaux. Il faut ensuite fermer la chambre à plasma avec les surfaces à traiter dedans et faire le vide. La chambre est maintenant remplie avec l'oxygène, puis la valve de la chambre est laissée à peine ouverte pour permettre un léger flot de gaz O₂ tout en maintenant la pression le plus près possible de 0,1 mbar en sortie (entre 0,9 et 1,2 mbar). Cette étape est délicate, n'ayant pas de régulateur (PlasmaFlo en option avec la nettoyeuse à plasma) pour imposer précisément le débit et la pression de gaz entrant. Les réglages optimaux semblent être de 30 secondes de radiation à puissance faible (6,8 W). Un léger plasma bleu-gris peut être aperçu dans la chambre, remarquablement différent du violet avec le plasma d'air. Une lumière trop faible peut être le signe d'un débit trop grand

ou trop petit. Les surfaces traitées sont alors mises en contact simplement en les posant l'une sur l'autre.

2.2 Dispositif expérimental

Nous détaillons ici la géométrie des canaux microfluidiques, puis les principes utilisés lors des expériences sous force de gravité et sous champ acoustique. Pour ce dernier, nous exposons la méthode d'émission des ultrasons par la vibration d'un barreau de verre et son intégration dans le système microfluidique. Les paramètres de contrôle sont explicités pour la production des bulles puis pour les doubles émulsions, ainsi que pour l'émission des champs acoustiques. Enfin, nous décrivons les méthodes de visualisation et d'extraction des données à partir des images.

2.2.1 Géométrie du canal microfluidique

Un canal microfluidique comporte plusieurs parties : les entrées des fluides, le générateur de bulle, ou de goutte, et le canal d'écoulement. Les entrées sont systématiquement suivies de filtres directement réalisés par lithographie. Ce sont plusieurs rangées de plots de $100\ \mu\text{m}$ de large et espacés de $50\ \mu\text{m}$ (la moitié de la largeur de l'orifice, voir le paragraphe suivant). Ainsi, les liquides n'ont pas besoin d'être filtrés. Les poussières plus grosses que la distance entre plots sont bloquées par les filtres et ne vont pas boucher le canal. La photo de la figure 2.8 montre un filtre après le passage de 5 mL d'eau. Se trouve ensuite le générateur des micro-émulsions. Les motifs et photos de la figure 2.8 sont des exemples de canaux pour produire des bulles et des doubles émulsions. Nous décrivons dans les paragraphes suivants leur technique de production. Après le générateur d'émulsions, les bulles, ou les gouttes, s'écoulent dans un canal d'une largeur pouvant varier entre 1 et 3 mm. Cette largeur importante permet de dévier les objets par des forces externes sur une distance suffisante pour effectuer des mesures de leurs trajectoires. Dans certains cas, par exemple lors d'expériences de démonstration d'aiguillage dans la partie 4.2.2, ce canal se sépare en deux branches partant à 45° , dont un exemple est montré sur la figure 2.8(b). Ceci permet d'illustrer les possibilités de tri et de guidage par des forces acoustiques.

Focalisation d'écoulement : production de mono-émulsion

Une majeure partie de ce travail concerne la manipulation de bulles de gaz produites dans de l'eau. Nous utilisons la technique de focalisation d'écoulement, ou *flow-focusing* en anglais, pour les générer. Elle est illustrée sur la figure 2.7 et la photo de la figure 2.8(c). Deux entrées de liquide et une entrée de gaz passe par un orifice fin. Lors de la formation d'une bulle, le gaz bouche partiellement

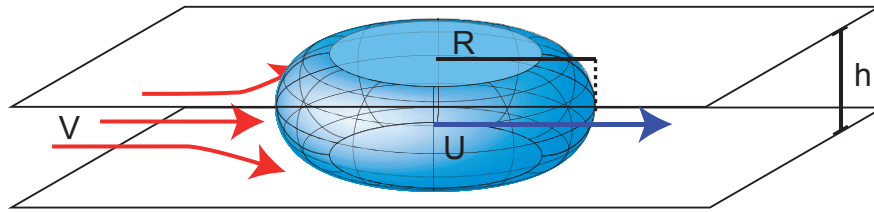


FIGURE 2.6 – Schéma d’une bulle confinée. La bulle s’écoule à une vitesse U , poussée par le liquide à la vitesse moyenne V .

l’orifice. Le liquide s’accumule en amont en pinçant le jet de gaz jusqu’à le couper. Une bulle est alors relâchée.

Cette technique ne permet pas de faire des bulles sphériques. Leur diamètre est inférieur à la hauteur du canal et ont une forme de sphère aplatie comme le montre la figure 2.6. Le nombre capillaire compare les effets visqueux aux effets capillaires dûs à la tension de surface : $Ca = \mu U / \sigma$. En prenant la viscosité de l’eau $\mu = 10^{-3}$ Pa.s, la tension de surface $\sigma_{e-g} = 35$ mN/m et la vitesse des bulles U de l’ordre de 10 mm/s, on obtient : $Ca = 3.10^{-4}$. Les effets visqueux sont donc très faibles devant la tension de surface. Nous pouvons alors considérer que la bulle ne se déforme pas lorsqu’elle est soumise à l’écoulement du liquide et garde cette forme axisymétrique de sphère aplatie.

Il existe de plus un film de lubrification entre le gaz et les parois du canal. C’est le cas lorsque le PDMS est hydrophile, ou si suffisamment de molécules de surfactant présentes dans l’eau sont venues s’adsorber sur les parois (voir la section 2.2.4). Si ce film n’était pas présent, le gaz serait en contact avec le PDMS et la bulle resterait accrochée, elle ne pourrait pas s’écouler. C’est ce que nous observons lorsque le PDMS est très hydrophobe.

Dans l’étude précédente [14], plusieurs géométries d’orifice ont été testées. Elles menaient à plusieurs régimes de production de bulle : goutte à goutte, bidisperse et monodisperse. Ici, la longueur de l’interface eau - gaz est réduite à $50 \mu\text{m}$ en largeur, comme le montre la figure 2.7. Il a été vu que cela favorise le régime monodisperse [14]. Un orifice ultracourt, $50 \mu\text{m}$ de longueur, est aussi utilisé pour permettre d’avoir des volumes de bulle plus importants et donc diminuer la fréquence de formation des bulles. De plus, cet orifice particulier ”fuit”, le blocage de l’écoulement d’eau par le gaz n’est pas très efficace et cela diminue encore plus la fréquence de formation des bulles. Tout cela permet de produire des bulles avec des fréquences faibles comparé à d’autres géométries plus adaptées pour produire des mousses. Les bulles sont isolées, suffisamment éloignées les unes des autres pour ne pas engendrer d’interaction hydrodynamique entre elles.

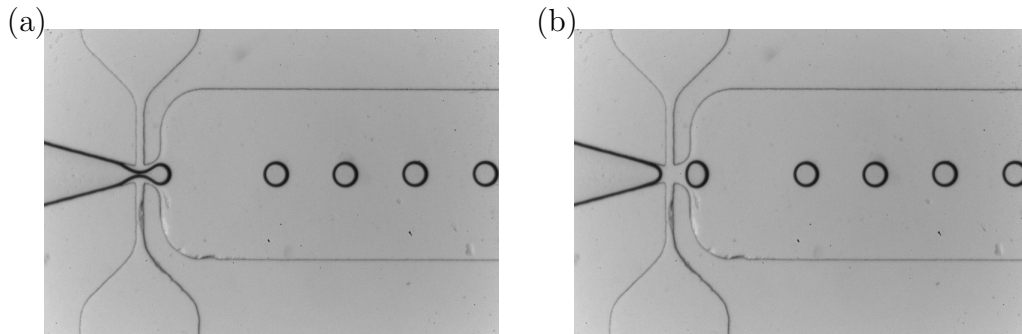


FIGURE 2.7 – Photos prises pendant la formation d’une bulle. Les 2 images sont prises à 1 ms d’intervalle. La largeur du canal est de 1 mm.

Marche dans le canal : une géométrie pour les doubles émulsions

Dans la section 4.2.3, nous manipulons par des ultrasons des gouttes d’huile dans de l’eau. Pour cela, nous incluons une bulle dans la goutte d’huile qui sert d’agent sensible aux ultrasons. Les figures 2.8 (b) et (d) illustrent le procédé de fabrication de ces doubles émulsions. L’huile et le gaz sont ”mélangés” dans une croix dont la hauteur n’est que de $6\ \mu\text{m}$. Celle-ci débouche ensuite dans un canal de $30\ \mu\text{m}$ de hauteur, dans lequel s’écoule de l’eau. La figure 2.9 est un schéma en perspective de cette marche. Une seule étude du groupe de Tabeling [38] fait référence à cette méthode pour produire des doubles émulsions, mais en utilisant toujours que des liquides.

En hydrodynamique, il est connu qu’un jet cylindrique se casse en goutte sphérique à cause de la tension de surface, ceci dû à l’instabilité de Rayleigh-Plateau. Mais si le jet est confiné, comme c’est le cas dans nos microcanaux, il reste stable. C’est pour cela qu’une marche sur le moule est nécessaire, c’est-à-dire d’avoir un canal fin qui débouche sur un autre canal de hauteur plus importante. Le jet d’huile confiné dans une épaisseur de $6\ \mu\text{m}$ se retrouve libre dans le canal de $30\ \mu\text{m}$ de hauteur, et se casse naturellement en goutte. Un écoulement d’eau dans ce dernier canal permet simplement d’amener plus loin les gouttes d’huile formées.

Cette technique permet de s’affranchir de traitements de surface locaux différents à plusieurs endroits du circuit microfluidique. En effet, une autre possibilité serait de faire deux appareils de focalisation d’écoulement en série, comme dans l’étude de Pannacci *et al.* [39]. Dans le premier sont fabriqués les bulles dans l’huile, puis dans le deuxième le jet d’huile serait coupé par l’eau pour former des gouttes. Mais cela pose problème quant aux propriétés des surfaces. Dans le premier appareil, l’huile doit envelopper la bulle de gaz et doit donc être en contact avec les parois du canal. Le PDMS doit alors être très hydrophobe. Dans un deuxième temps, c’est l’eau qui doit envelopper l’huile pour faire des gouttes d’huile et le PDMS doit alors être très hydrophile. Les surfaces doivent donc

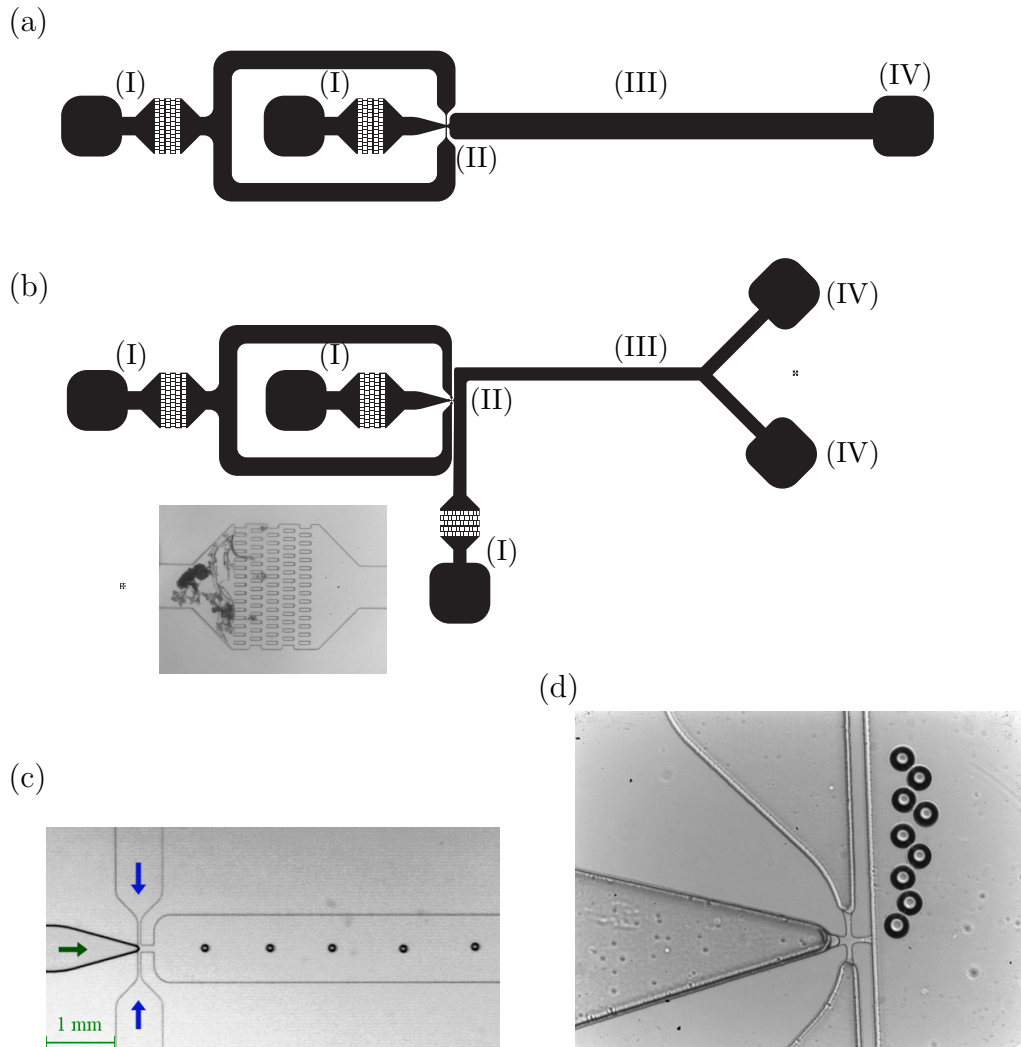


FIGURE 2.8 – Canaux microfluidiques pour la production (a) et (c) de bulles et (b) et (d) de doubles émulsions. Sur le motif (a), se trouve, de gauche à droite, l'arrivée d'eau puis celle du gaz (I), le générateur de bulles (II), le canal d'écoulement (III) ici de 1 mm de large, puis la sortie (IV). Sur le motif (b), il y a à gauche les entrées d'huile puis de gaz. L'arrivée d'eau se fait par l'entrée du bas. En insert, photo d'un filtre partiellement encrassé après le passage de 5 mL d'eau non filtrée au préalable. Les photos (c) et (d) sont des zooms des zones (II).

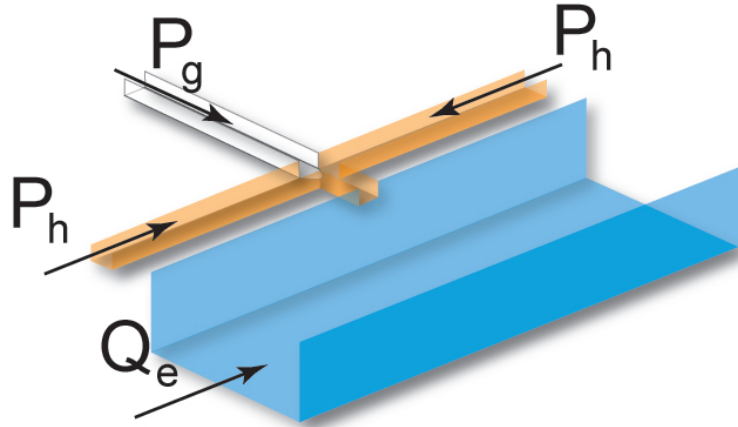


FIGURE 2.9 – Schéma en perspective de la marche après la croix mélangeant le gaz et l'huile. Le gaz en blanc et l'huile en orange (sous pression) sont dans des canaux de $6 \mu\text{m}$ de hauteur, l'eau en bleu (à débit imposé) dans un canal de $30 \mu\text{m}$.

avoir des propriétés très différentes dans le même circuit et cela est très complexe à réaliser [40]. Le principe de la marche permet de nous affranchir de cet inconvénient. Les premiers résultats et la description de la formation de gouttes d'huile contenant une bulle de gaz sont donnés en section 3.1.

La très faible épaisseur du canal fin induit une résistance hydraulique très importante. Elle est calculée avec la relation suivante pour un canal de section rectangulaire :

$$R_{hyd} = \frac{12 \mu L_{const}}{w_{const} h_{const}^3 (1 - 0,63 h_{const}/w_{const})} \quad (2.1)$$

avec μ la viscosité dynamique, ici de l'huile égale à $4.11 \cdot 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ (voir section 2.2.4), L_{const} la longueur de la constriction, w_{const} sa largeur et h_{const} sa hauteur. Nous limitons la longueur à $120 \mu\text{m}$, seulement à l'endroit où sont formées les bulles dans l'huile, et la largeur est fixée à $10 \mu\text{m}$. Ensuite, la pression P_h dans l'huile est obtenue avec un débit Q_h imposé avec la relation : $P_h = R_{hyd} Q_h$. Nous constatons que la résistance hydraulique varie en h_{const}^{-3} . La hauteur du canal passant de 30 à $6 \mu\text{m}$, la pression d'huile est alors multipliée par 125 par rapport à un canal sans cette marche. Pour des débits de l'ordre de $1 \mu\text{L}/\text{min}$, la pression atteint $0,7 \text{ bar}$. A ces gammes de pression, le PDMS se déforme de façon importante et le système prend beaucoup de temps (plusieurs heures) pour stabiliser la pression et le débit effectif au débit imposé par le pousse-seringue. Il est alors préférable de fixer la pression de l'huile et c'est le débit qui s'ajuste de façon quasi-immédiate (en théorie à la vitesse des ondes de compression).

2.2.2 Expériences sous gravité

Dans le chapitre 3 sur l'étude de l'écoulement des bulles dans les microcanaux, l'équation régissant la friction aux parois et la traînée visqueuse des bulles est calibrée par la force d'Archimède. Elle est appliquée de façon transversale à l'écoulement des bulles et dans le plan du canal, pour les dévier d'une trajectoire rectiligne. Pour ce faire, le canal microfluidique est incliné autour de son axe x avec un angle θ variable de 0 à 90° , comme le montre la figure 2.10.

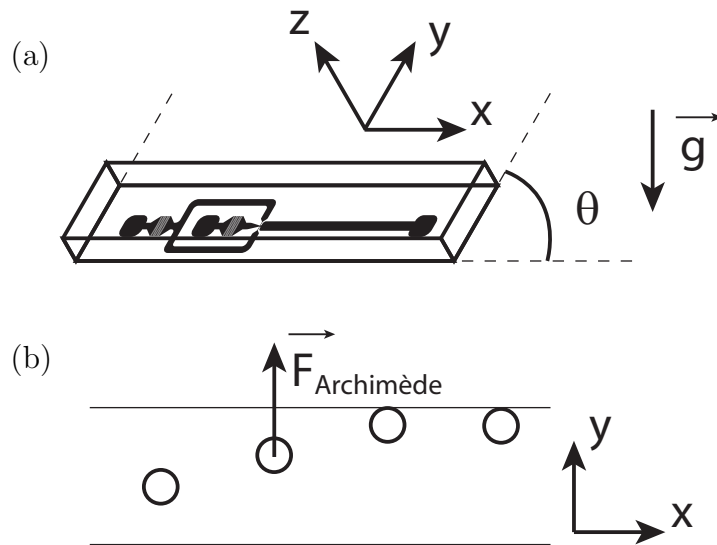


FIGURE 2.10 – (a) Schéma du dispositif incliné avec un angle θ pour les expériences sous gravité. (b) Schéma en vue de dessus de bulles s'écoulant dans le canal et subissant la force d'Archimède de façon perpendiculaire (sur l'axe y) à leur écoulement (sur l'axe x).

Le nombre de Reynolds compare l'amplitude des effets d'inertie aux effets visqueux : $Re = UL\rho/\mu$. En prenant 10 mm/s comme ordre de grandeur pour la vitesse des bulles, la viscosité de l'eau égale à $10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ avec une masse volumique de 10^3 kg/m^3 , et une distance caractéristique égale à la hauteur du canal d'environ $100 \mu\text{m}$, on obtient $Re = 1$. Les effets inertiels étant faible, les écoulements sont donc laminaires. La force d'Archimède sur l'axe y est alors directement égale et opposée à la force de friction et de traînée.

2.2.3 Expériences sous champ acoustique

Le PDMS atténue très fortement les ultrasons (voir plus loin sur les propriétés acoustiques du PDMS). De plus, le dispositif précédemment utilisé [14] montrait un effet sur l'ensemble du microcircuit et perturbait la production des bulles. Pour s'affranchir de ces inconvénients, un nouveau dispositif a été conçu où les

ultrasons se propagent dans un guide d'onde, un barreau en verre de dimensions millimétriques, moulé dans la matrice de PDMS et très proche du canal. L'atténuation ne se fait que sur une très courte distance et l'effet est bien localisé à un endroit spécifique du circuit. Nous étudions dans un premier temps les modes de vibration du barreau en verre, puis nous décrivons son intégration dans le circuit microfluidique.

Barreau en verre résonant

Les dimensions typiques du barreau en verre sont de 1 mm en épaisseur (axe z sur la figure 2.12), entre 2 et 4 mm de large (axe x), et 20 à 30 mm de longueur (axe y). Les différents barreaux utilisés proviennent du découpage avec une pointe de diamant de lames de microscope. Une pastille piézoélectrique y est collée (colle époxy Araldite). En envoyant un signal électrique sur les électrodes du piézo, celui-ci se met à vibrer à la fréquence imposée et transmet ses vibrations au barreau.

Nous étudions en premier lieu la vibration du barreau libre, non moulé dans le PDMS. Pour tester la vibration du barreau, l'amplitude des ondes acoustiques est mesurée avec une aiguille hydrophone (NP10A90-3, Dapco), un capteur de pression composé d'un tout petit élément piezo de 1 mm monté au bout d'une aiguille. Cette aiguille hydrophone n'est pas calibrée et ne permet pas d'avoir la valeur absolue de la pression. Elle est simplement posée sur le verre, avec un ménisque d'eau entre les deux pour une bonne transmission des ondes acoustiques. La gamme de fréquence testée est typiquement entre 20 et 120 kHz. L'aiguille est translaturée par pas de 25 μm sur tout le long du barreau, sur l'axe y , grâce à un micro-manipulateur. La figure 2.11(a) est un exemple de résultat d'une mesure.

Nous remarquons qu'à certaines fréquences, autour de 30, 60, 90 et 120 kHz, l'amplitude de vibration est importante et comporte des noeuds (minima) et des ventres (maxima) de pression. Ces vibrations sont donc des ondes stationnaires. A ces fréquences, ce sont les modes de résonance du barreau qui sont excités. Le mode fondamental se trouve vers 30 kHz et les harmoniques se répètent à des fréquences proches des multiples du mode fondamental.

La distance entre deux noeuds de pression ne représente que la moitié d'une longueur d'onde car l'aiguille ne donne que l'amplitude de l'onde. Cette distance, la demi-longueur d'onde, est de l'ordre de 4 mm pour 120 kHz. Ce sont des distances supérieures à la largeur du barreau (axe x). L'amplitude est donc constante sur toute la largeur et le gradient de pression se trouve uniquement dans la longueur (axe y).

En multipliant la fréquence et la mesure de la longueur d'onde (entière, donc deux fois la distance entre deux noeuds), nous calculons la vitesse de ces ondes. La figure 2.11(b) montre que cette vitesse varie avec la fréquence à des valeurs 5 à 10 fois inférieures à celle des ondes de compression dans le verre, autour de 5300

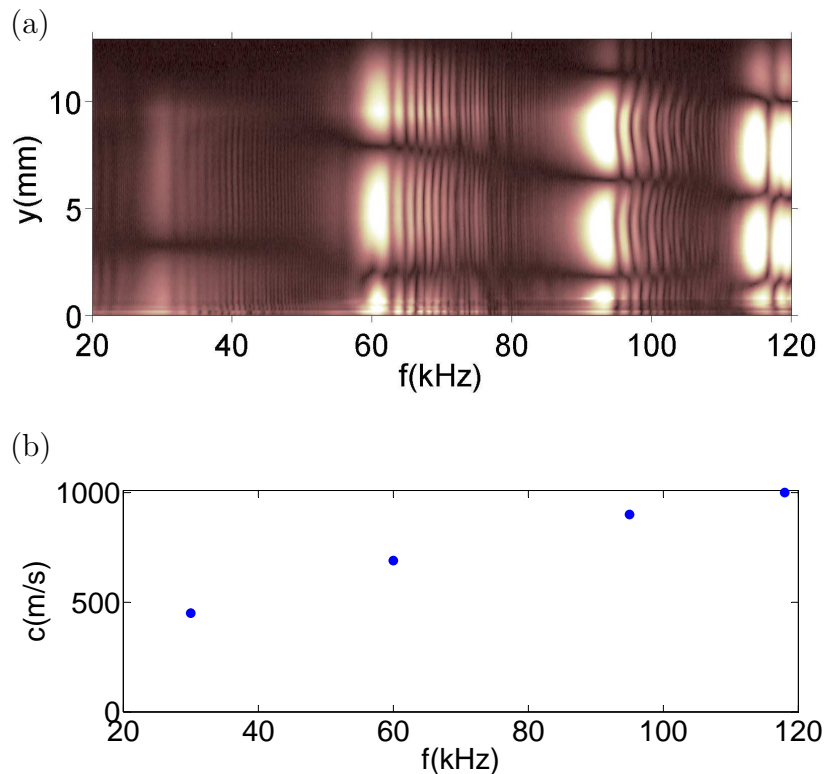


FIGURE 2.11 – (a) Diagramme spatio-fréquentiel de l’amplitude acoustique mesurée sur le barreau en verre. Plus la couleur est claire, plus l’amplitude acoustique est élevée. (b) Vitesse des ondes stationnaires dans le barreau en verre résonant en fonction de la fréquence.

m/s. Ceci est caractéristique des ondes de Lamb antisymétriques, en accord avec la thèse de Haake [41]. Ce sont des ondes qui se propagent à la fois dans le volume et à la surface du matériau. Elles surviennent lorsque l’épaisseur de la lame est plus petite que leur longueur d’onde. Les deux surfaces du barreau vibrent comme le fait un drapeau dans le vent, ou un tapis que l’on secoue. L’annexe B décrit les différentes ondes acoustiques qui se propagent en volume et en surface.

Nous pouvons finalement considérer que le barreau en verre se comporte comme une source d’ultrasons étendue et modulée spatialement. Il y a des noeuds et des ventres de pression dont il est possible de changer les positions en modifiant le mode de résonance, c’est-à-dire en changeant la fréquence d’excitation.

Intégration dans le dispositif microfluidique

Le barreau de verre est moulé dans la matrice de PDMS très près du canal et de façon perpendiculaire, comme le montre la figure 2.12. Il est simplement

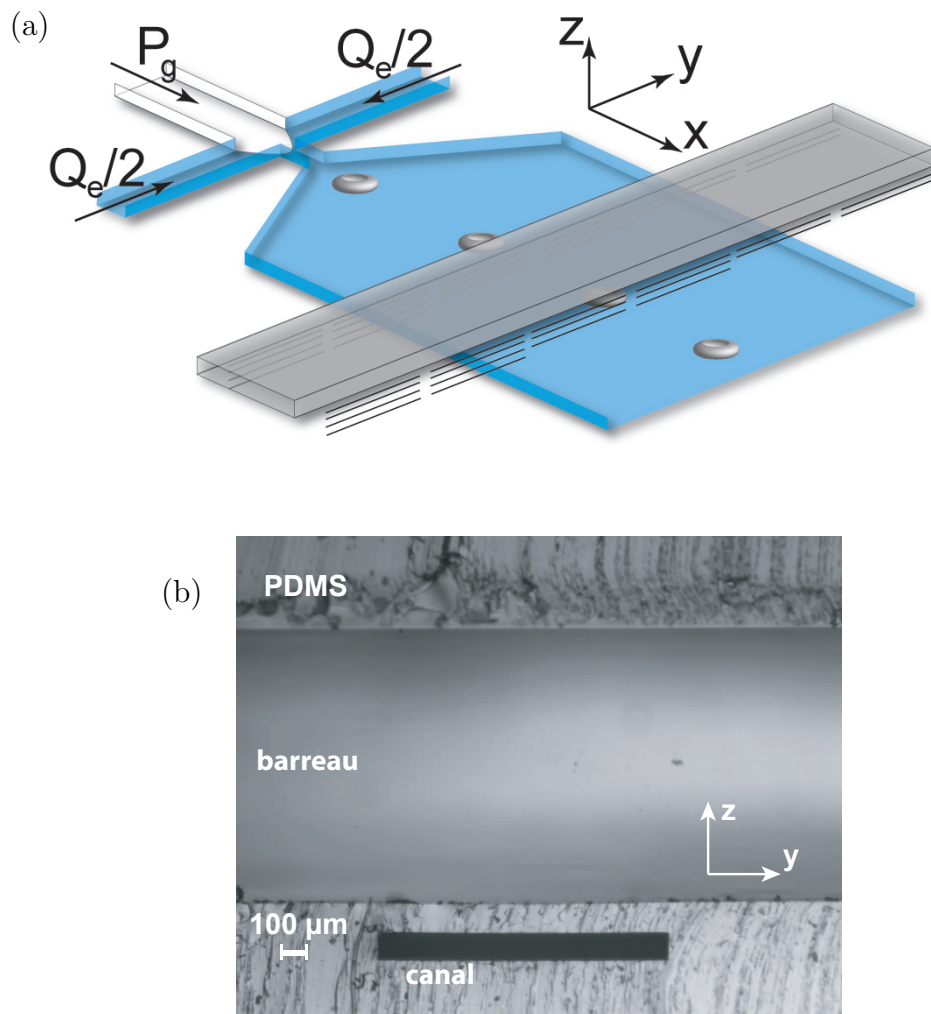


FIGURE 2.12 – (a) Schéma du dispositif microfluidique et acoustique, le canal est en bleu, le barreau de verre en gris. (b) Photo d'une coupe d'un système microfluidique. Le barreau en verre de 1 mm d'épaisseur (axe z) se trouve $100 \mu\text{m}$ au-dessus du canal vu en coupe, d'une hauteur aussi de $100 \mu\text{m}$.

posé sur le moule par-dessus le motif. Des essais où le barreau est directement en contact avec l'intérieur du canal révèlent plusieurs problèmes. Les bulles restent accrochées au passage entre le PDMS et le verre, et leur friction sur les parois est modifiée. Pour résoudre cela, un petit intervalle de PDMS est fait entre le verre et le canal. Le barreau n'est pas posé sur la résine du moule, mais sur de petites cales placées de part et d'autre du motif et légèrement plus épaisses que celui-ci. Des lamelles en verre pour microscopie de $150\ \mu\text{m}$ d'épaisseur sont utilisées. Le barreau se retrouve alors à $150\ \mu\text{m}$ d'altitude, alors que les moules ne dépassent pas les $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Un interstice de 50 à $100\ \mu\text{m}$ de PDMS sépare donc le verre du canal. Les bulles peuvent s'écouler sans être gênées et les ultrasons ne sont atténués que sur une très courte distance.

Cependant, le barreau pourrait faire vibrer la lame de verre sur laquelle est collé le canal. Elle ne se trouve qu'à $150\ \mu\text{m}$ de distance de la source d'ultrason et ses modes de vibration pourraient être excités et créer un deuxième champ acoustique parasite. Pour éviter cela, le canal est systématiquement collé sur un support en PDMS. Ainsi, le barreau est le seul élément qui peut vibrer et il est donc la seule source d'ultrasons dans le système. Cela procure aussi l'avantage que toutes les parois des canaux sont identiques.

Le barreau étant moulé de façon perpendiculaire par rapport au canal, les forces acoustiques sont uniquement dans la direction transverse à l'écoulement des bulles (les forces acoustiques étant dans la direction du gradient, voir la section 4.1). Nous utilisons donc des fréquences inférieures à $140\ \text{kHz}$. De plus, la distance entre deux noeuds de pression ($4\ \text{mm}$ au minimum) est plus grande que la largeur du canal ($1\ \text{mm}$ dans la majorité des cas). Il est donc rare qu'un noeud ou un ventre de pression soit centré sur le canal, sur l'écoulement des bulles. Elles ne subissent en général qu'un gradient de pression qui les poussent jusqu'aux bords du canal.

Il reste cependant des questions non élucidées à propos de la propagation de l'onde acoustique. Notamment, le principe physique de la transmission de l'onde entre le barreau de verre vibrant et l'intérieur du canal nous échappe. Nous n'avons pas tenté de résoudre totalement ce problème car il ne semble pas critique pour la compréhension des phénomènes physiques observés par la suite.

Propriétés acoustiques du PDMS

Peu de littérature est disponible en ce qui concerne les propriétés acoustiques du PDMS. Des mesures ont été effectuées grâce à un émetteur piezo focalisé fonctionnant de 1 à $10\ \text{MHz}$ avec une amplitude proche d'un bar au point focal. La vitesse des ondes de compression a été mesurée à $c_{PDMS} = 1030\ \text{m/s}$, valeur identique à celle que l'on peut trouver sur le site Internet de Onda [42]. L'atténuation de l'énergie acoustique est de $0,7\ \text{dB/MHz/mm}$, en accord avec les mesures de

Kapishnikov [33]. C'est une valeur très importante, comparée à celle du verre qui est de 0,013 dB/MHz/mm.

L'impédance acoustique du PDMS est : $Z_{PDMS} = \rho c_{PDMS} = 1,08$ MRayl, très proche de celle de l'eau $Z_{eau} = 1,48$ MRayl. Ceci amène à un bon coefficient de transmission de l'énergie acoustique entre l'eau et le PDMS :

$$T_{PDMS-eau} = \frac{4Z_{PDMS}Z_{eau}}{(Z_{PDMS} + Z_{eau})^2} = 97,6 \%$$

Les ondes acoustiques traversent donc l'interface PDMS-eau sans être réfléchies. Nous pouvons alors supposer que la pression dans le canal est égale à celle dans le PDMS juste derrière la surface.

2.2.4 Paramètres de contrôle

Il y a deux jeux de paramètres différents, l'un pour la partie microfluidique et l'autre pour la partie acoustique. Le dispositif expérimental général est schématisé sur la figure 2.13.

Paramètres pour la production de bulles et de gouttes

Il y a deux éléments à maîtriser pour la production des micro-émulsions : le(s) liquide(s) et le gaz.

Dans le cas de bulle simple, le liquide est un mélange d'eau déionisée avec 10% de surfactant (liquide vaisselle commercial Dreft, Procter&Gamble). Cette concentration permet d'être à 40 fois la concentration micellaire critique (CMC = 8 mM). A ces échelles micrométriques, la courbure des interfaces coûtent beaucoup d'énergie et l'ajout de surfactant permet de diminuer la tension de surface eau-gaz à $\sigma_{e-g} = 35$ mN.m⁻¹. De plus, le surfactant s'adsorbe sur les parois en PDMS des canaux et les rend petit à petit hydrophiles. Dernier avantage, les molécules de surfactant stabilisent les interfaces liquide-gaz et les bulles ne coalescent pas lorsqu'elles viennent en contact. Le débit de liquide Q_e est imposé par un pousse-seringue (11 Pico Plus, Harvard Apparatus). Les débits utilisés vont de 40 à 260 μ L/min.

Le gaz est de l'azote N_2 provenant d'une bouteille sous pression à 200 bars (Azote U, Air Liquide). Un premier détendeur en sortie de bouteille donne une pression de 0,7 bar, pression à laquelle fonctionne un deuxième détendeur qui permet de régler la pression de façon précise. Un capteur de pression (40PC, Honeywell) est monté en parallèle avant l'entrée du canal pour mesurer la pression de gaz imposée. Les pressions utilisées vont de 3 à 18 kPa.

Dans le cas des doubles émulsions, des bulles de gaz sont produites dans une goutte d'huile qui s'écoule dans de l'eau. Pour le gaz et l'eau, rien ne change. L'huile utilisée est de l'huile fluorée (Fluorinert FC40, 3M), de viscosité proche

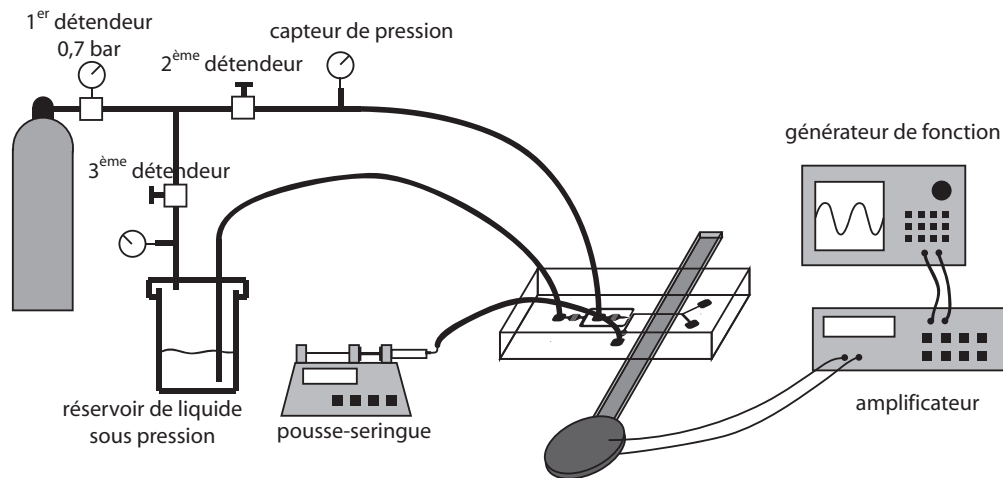


FIGURE 2.13 – Schéma général du dispositif expérimental.

de celle de l'eau $\mu_h = 4,11 \cdot 10^{-3}$ Pa.s, et une tension de surface de $\sigma_{h-g} = 16$ mN.m⁻¹. Lors de ces expériences, le surfactant SDS dans l'eau a été remplacé par du Tween20 utilisé à 100 fois la CMC (égale à 0,06 mM), ce qui correspond à 1% en concentration. Le Tween20 a été choisi à la place du SDS pour avoir une meilleure encapsulation (voir section 3.1). Comme expliqué dans la section 2.2.1, il est nécessaire de fixer la pression de l'huile au lieu du débit. Pour cela, l'huile est dans un réservoir fermé hermétiquement qui est mis sous pression (voir figure 2.13). Un tuyau venant de la bouteille de gaz suivie d'un détendeur traverse le bouchon et impose la pression à l'intérieur. Un autre tuyau plonge dans le fond du réservoir pour permettre à l'huile de sortir avec une pression égale à la pression imposée. Un deuxième capteur de pression est branché sur cette ligne de gaz, juste avant le réservoir, pour mesurer la valeur de la pression de l'huile.

Paramètres pour les champs acoustiques

Il n'y a que deux paramètres de contrôle pour les champs acoustiques : la fréquence et l'amplitude du signal électrique envoyé à la pastille piezo-électrique. La forme de ce signal est toujours sinusoïdale. Il est envoyé par un générateur de fonction (AFG3102, Tektronix) vers un amplificateur (7600M, KrohnHite). Les paramètres varient typiquement entre 20 et 200 kHz pour la fréquence, et jusqu'à 60 V pour la tension.

2.2.5 Visualisation et mesures

Appareils de visualisation

Les expériences sous gravité (section 3.2.2) se déroulent sur le dispositif expérimental de la thèse de Raven [14] (figure 2.14). C'est une structure légère en aluminium qui peut facilement être inclinée sur le plan de travail. Plusieurs éléments sont montés sur différents étages, dont de haut en bas :

- une caméra CMOS (Marlin F131B, AVT) avec un objectif macro de 50 mm de focale ;
- le canal microfluidique ;
- une plaque semi-transparente diffusant la lumière ;
- une matrice de 6×10 LED.

La fréquence d'acquisition de la caméra peut varier avec la luminosité et la taille des images prises. Elle peut monter jusqu'à 300 Hz pour des images de 400×200 pixels². La lentille macro permet d'éloigner suffisamment la caméra (de plusieurs dizaines de centimètres) pour avoir une vue large du microcanal. Le champ de vue fait plusieurs cm², les mesures peuvent se faire sur une longue distance dans le canal, mais la précision est faible, la taille des pixels étant d'environ $28 \mu\text{m}$. Les LED permettent d'avoir un éclairage constant et suffisamment fort. Le champ de lumière est rendu homogène par la plaque diffusante.

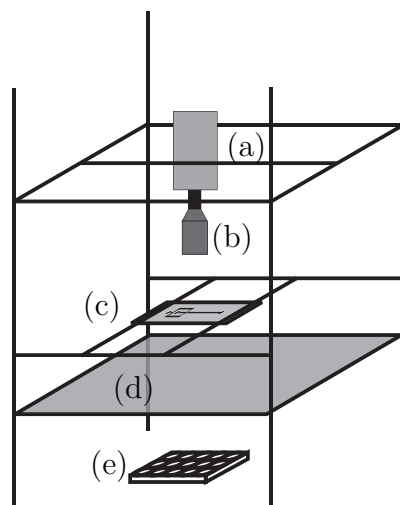


FIGURE 2.14 – Schéma du système de visualisation pour les expériences sous gravité [14]. (a) caméra, (b) lentille macro, (c) canal microfluidique, (d) plaque diffusante, (e) système de LED.

Pour effectuer des mesures plus précises, lors des expériences sous champ acoustique notamment, le système microfluidique est placé sous un microscope (IX70,

Olympus). Nous obtenons de plus une grande précision temporelle avec l'utilisation d'une caméra rapide (Miro4, Phantom). Avec des images de 800×600 pixels², la fréquence d'acquisition peut aller jusqu'à 1200 img/s tout en maintenant un temps d'exposition extrêmement réduit de $2 \mu\text{s}$. La taille des pixels avec un zoom $\times 10$ est de $2,2 \mu\text{m}$. Les images sont prises généralement entre 200 et 1000 img/s.

L'inconvénient de travailler sur microscope est que l'échantillon, le système microfluidique, doit être placé au plus proche de l'objectif. Comme expliqué dans la section 4.2.2, l'application de l'aiguillage nécessite beaucoup d'espace libre au-dessus et en-dessous du canal. Pour cela, selon les besoins, nous utilisons un microscope stéréoscopique (V8, Zeiss) qui permet une distance de travail entre l'objet observé et l'objectif de 63 mm.

Données extraites des images

Nous mesurons sur les images principalement la taille des bulles et leur trajectoire avec leur vitesse. Pour cela, les images sont d'abord traitées avec le logiciel ImageJ [43]. Le processus est illustré sur la figure 2.15.

Nous calculons d'abord la moyenne de chaque pixel sur toute la durée du film. Cela donne une image sur laquelle est présent tout ce qui ne bouge pas pendant tout le film, notamment les poussières et autres artéfacts. Ensuite, nous faisons la différence entre les images du film et cette moyenne. La soustraction rend comme résultat 0 si la différence des niveaux de gris entre deux mêmes pixels de chaque image est négative, le logiciel ne pouvant interpréter des valeurs de niveaux de gris négatives (valeurs codées sur 8 bits allant de 0 à 255). En revanche, la différence garde la valeur absolue. Les bulles qui sont noires (valeur du niveau de gris de 30) sur fond gris (niveau de gris de 160) ressortent alors en blanc (valeur $|30 - 160| = 130$) sur fond noir (valeur 0). Une extension d'ImageJ, le ParticleTracker permet de mesurer automatiquement les trajectoires des bulles. Il faut spécifier, parmi d'autres paramètres, la taille de l'objet et la distance parcourue entre deux images. Le logiciel donne les coordonnées des bulles pour chaque image. Un traitement de ces données sur un tableur permet de retracer les trajectoires et d'en extraire les vitesses sur chaque axe, longitudinal et transverse à l'écoulement du liquide.

Pour les mesures présentées dans la section 5.1 sur l'interaction acoustique, seule la distance entre bulles compte. Il est facile de l'obtenir sur une simple image avec l'analyseur de particule inclus par défaut dans ImageJ.

2.3 Conclusion

Notre objectif dans ce chapitre était d'exposer les moyens que nous avons utilisés pour effectuer notre étude et les apports que nous avons faits pour les

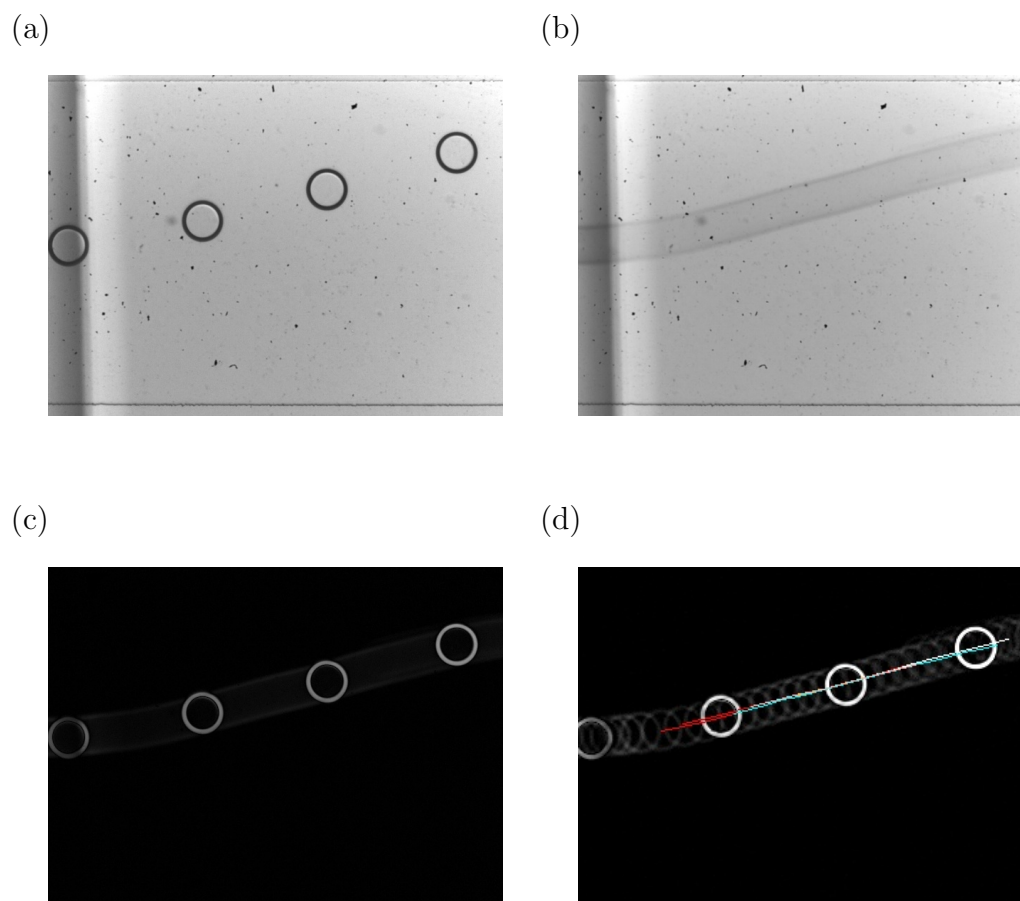


FIGURE 2.15 – Procédé de traitement des images. Toutes les images du film brut (a) sont moyennées (b). La différence entre le film et cette image est calculée pour obtenir (c) un film sans poussière ou autres artefacts. Les trajectoires des bulles représentées par des lignes de couleurs (d) sont calculées automatiquement.

adapter à nos besoins.

Dans une première partie, nous avons d'abord décrit la technique de photolithographie classique agrémenté de remarques sur son optimisation, notamment concernant la qualité des masques plastiques.

Nous avons ensuite exposé l'adaptation que nous avons mise en oeuvre pour produire des moules avec plusieurs couches. Beaucoup de détails techniques doivent être respectés mais nous avons montré qu'il est possible d'obtenir un moule avec une épaisseur variant de 6 à 30 μm . Cette technique, bien que complexe à mettre en oeuvre, a un grand potentiel pour élaborer des canaux avec deux, voire encore plus, de hauteurs différentes.

Enfin, nous avons expliqué en détails la technique de lithographie douce. La méthode pour sceller les canaux en PDMS avec l'utilisation d'un plasma d'air étant peu fiable, nous avons utilisé une variante avec un plasma d'oxygène pur qui s'est révélée plus robuste.

Dans une deuxième partie, nous avons décrit le dispositif expérimental. Nous avons d'abord détaillé la géométrie des microcanaux que nous avons réalisés pour produire les microbulles et les microémulsions. La technique des moules multicouches nous apportent l'avantage de ne pas effectuer des traitements de surface locaux et complexes à réaliser pour la production des microémulsions. Elle pose cependant le problème d'une grande résistance hydraulique dans le circuit microfluidique. Pour palier cette difficulté, la pression du liquide de la phase discontinue, au lieu de son débit, doit être imposée, ce qui complexifie légèrement le dispositif général.

Ensuite, deux types d'expériences sont décrites, en appliquant une force de gravité sur les bulles, en inclinant simplement le canal autour de son axe, puis sous champ acoustique. Ici, pour résoudre le problème de la forte atténuation acoustique due au PDMS, nous avons intégré avec succès dans le dispositif microfluidique un barreau en verre vibrant, véritable guide d'onde pour les ultrasons. L'étude de la vibration de ce barreau en verre a montré que nous excitons ses modes de résonance. La mesure de la vitesse de ces ondes stationnaires a cependant révélé que ce sont des ondes de Lamb, avec une vitesse bien inférieure à celle attendue pour des ondes de compression. Nous avons aussi déterminé les propriétés acoustiques du PDMS, son coefficient d'atténuation et la vitesse des ondes de compression. Ces valeurs pourront agrémenter la littérature assez pauvre pour ce matériau, pourtant largement utilisé en microfluidique.

Enfin, nous avons donné les paramètres de contrôle des expériences et les méthodes de visualisation et de mesure. Les images étant de bonne qualité, peu de traitement informatique est nécessaire avant d'en extraire les données.

Nous avons décrit dans ce chapitre les moyens techniques mis en oeuvre pour étudier l'interaction entre un champ acoustique et une bulle s'écoulant dans un microcanal. La méthode d'inclure un barreau en verre résonant dans le dispositif microfluidique est relativement simple et rapide à mettre en oeuvre. Elle a cependant le désavantage de ne pas nous donner le libre choix des fréquences acoustiques émises, étant limitées à celles des modes de résonance du guide d'onde. De plus, la position des noeuds et des ventres de pression n'est pas contrôlée. Ainsi, nous ne pouvons pas connaître exactement l'amplitude acoustique dans le canal. Un meilleur dispositif pourrait probablement être trouvé pour améliorer ces deux points.

Dans le chapitre suivant, nous allons utiliser les canaux à hauteurs variables pour produire les microémulsions avec le principe de la marche présenté ici. Nous étudions en détails la génération de ces doubles émulsions et nous nous intéressons à l'écoulement des bulles dans les microcanaux. Les expériences avec la force de gravité sont alors utiles pour calibrer le modèle que nous établissons à propos de la force de traînée des bulles.

Chapitre 3

Microbulles : génération et écoulement

Dans ce chapitre, nous exposons notre étude sur la génération des doubles émulsions et la force de traînée des bulles dans les microcanaux. La production de bulle en fonction des paramètres et de la géométrie du canal n'est pas décrite ici car elle a déjà été exposée dans la thèse de Raven [14]. Le système décrit dans le chapitre précédent donne un jeu de paramètres original pour la production des doubles émulsions, imposant la pression du gaz, celle de l'huile, et le débit de l'eau. Ceci nous amène à étudier le processus de formation d'une double émulsion et l'influence de ces paramètres sur sa taille. De plus, nous modélisons l'écoulement d'une bulle dans un microcanal en s'inspirant d'autres études. La vérification expérimentale de ce nouveau modèle est menée en appliquant sur les bulles la force d'Archimède selon la méthode décrite précédemment.

Dans une première partie, nous exposons le processus de formation des doubles émulsions, puis l'influence des paramètres sur le volume de chaque composant. Nous établissons dans une deuxième partie un modèle pour la force de traînée des bulles confinées, prenant en compte la force de Stokes et la friction sur les parois des microcanaux. Ce modèle est ensuite vérifié et calibré expérimentalement.

3.1 Génération des doubles émulsions

Nous développons dans la section 4.2.3 une application des forces acoustiques. Nous cherchons à manipuler des gouttes d'huile qui s'écoulent dans un microcanal. Pour la réaliser, nous devons inclure une bulle de gaz au sein de la goutte d'huile, le tout s'écoulant dans de l'eau. Nous détaillons ici la génération de ces doubles émulsions. Ces objets ont été récemment fabriqués et étudiés en microfluidique, notamment par Tabeling [39] et Stone [44]. Chacun utilise une technique différente (double focalisation d'écoulement, ou un seul suivi d'une jonction T) mais les paramètres sont identiques (débits des liquides et pression du gaz).

Ici, nous utilisons un autre procédé avec des paramètres différents. Le principe de la marche permet de casser naturellement le jet de liquide en gouttes. Comme expliqué dans la section 2.2.1, cela requiert d'imposer la pression du liquide de la goutte, au lieu du débit. Le gaz est aussi à pression imposé. L'eau, qui est le milieu continu, a un débit volumique fixé. Nous avons alors trois paramètres de contrôle : la pression du gaz P_g , la pression de l'huile P_h et le débit de l'eau Q_e . Les ordres de grandeur sont une vingtaine de kiloPascals pour les pressions, et entre 20 et 100 $\mu\text{L}/\text{min}$ pour le débit d'eau.

Encapsulation d'une bulle : effet des tensions de surface

Les fluides utilisés sont de l'azote gazeux, de l'eau avec du surfactant (Tween20) à 1% de concentration, et de l'huile fluorée. Les tensions de surface entre chacun d'eux permet de calculer le paramètre d'étalement, défini dans [39] : $S_i = \sigma_{j-k} - (\sigma_{i-j} + \sigma_{i-k})$. Le tableau 3.1 résume ces différentes quantités. La valeur de la tension de surface huile - gaz σ_{h-g} se trouve sur la fiche technique du fabricant de l'huile. Une étude [45] donne celle de l'interface entre l'eau mélangée avec du Tween20 et le gaz, σ_{e-g} . Enfin, l'énergie superficielle entre huile et eau avec surfactant σ_{e-h} a été mesurée par la méthode de la goutte pendante. Il suffit de mesurer dans un bain d'eau le volume d'une goutte au moment où elle se détache d'un tuyau de diamètre connu, puis d'appliquer la loi de Tate qui lie la tension de surface au poids de la goutte et au rayon du tube [46]. L'opération est facilitée en divisant le volume d'huile sortant d'une seringue par le nombre de gouttes produites.

	σ_{i-j} (mN/m)	S_k (mN/m)
eau-huile	8	$S_g=8-(35+16)=-43$
eau-gaz	35	$S_h=35-(8+16)=11$
huile-gaz	16	$S_e=16-(5+35)=-27$

TABLE 3.1 – Tensions de surface entre les fluides avec les paramètres d'étalement.

Le diagramme de phase de la figure 3.1 provient de l'étude de Pannacci *et al.* [39]. Il montre l'existence de doubles émulsions avec leur morphologie en fonction des paramètres d'étalement des phase discontinues. En effet, selon les valeurs de S_i , l'objet peut prendre différentes formes. Le fluide interne peut être séparé du fluide externe par celui qui se trouve au milieu, on parle d'encapsulation totale. Ou les deux phases discontinues peuvent avoir toutes les deux une interface avec le liquide environnant, c'est une encapsulation partielle et on parle de particule Janus, d'après le nom d'un dieu à deux visages de la mythologie grecque. Enfin, les deux fluides internes peuvent ne pas avoir d'interface commune, bien qu'ils restent en contact. Dans cette étude, il s'agit toujours de liquide, jamais de composant

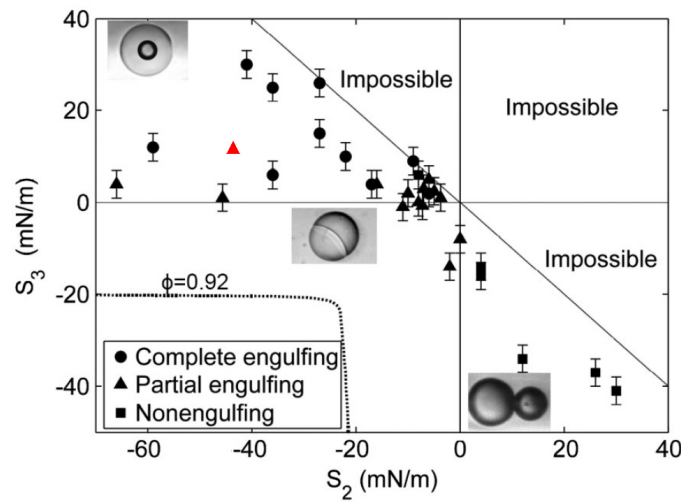


FIGURE 3.1 – Diagramme de phase de doubles émulsions fabriquées dans [39] en fonction des paramètres d'étalement des phases discontinues. Dans certaines zones, les doubles émulsions ne peuvent pas exister. Les cercles représentent une encapsulation totale, les triangles une encapsulation partielle et les carrés pas d'encapsulation. S_2 correspond à notre paramètre d'étalement du gaz, et S_3 à celui de l'huile. Le triangle rouge est notre double émulsion gaz-huile dans le mélange eau+Tween20.

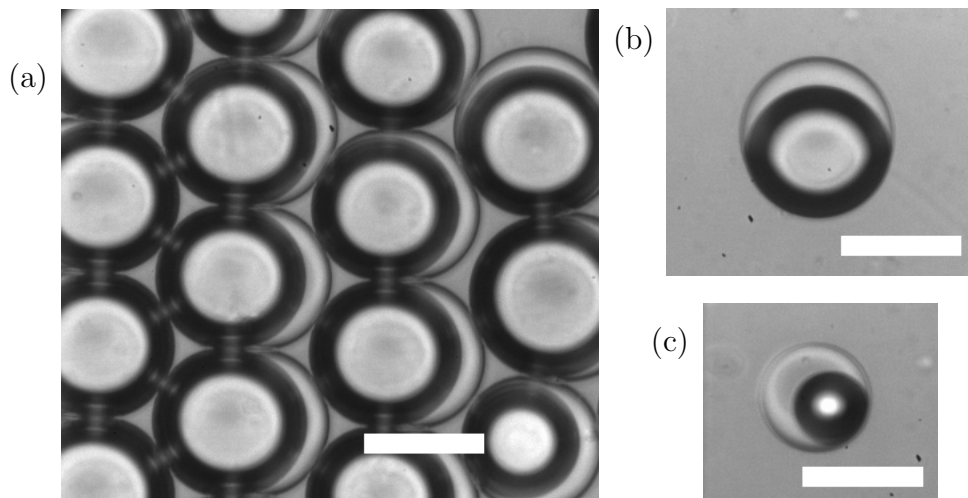


FIGURE 3.2 – Photos de doubles émulsions. Les traits noirs épais sont les bords des bulles, les traits plus fins sont ceux des gouttes d'huile. La barre blanche représente $100 \mu\text{m}$.

gazeux. Pour notre cas, nous nous plaçons près de la zone des particules Janus. C'est un caractère faible, mais il est présent sur les photos de la figure 3.2, les bulles ne sont pas complètement encapsulées par l'huile.

Formation d'une double émulsion

Nous exposons sur les photos de la figure 3.3 le processus de formation des doubles émulsions en détails. Ces images sont prises avec une caméra rapide avec un intervalle entre chaque image de quelque millisecondes, avec une fréquence de formation d'environ 20 doubles émulsions par seconde. Tant que l'interface eau-huile reste dans les canaux fins de $6 \mu\text{m}$ de hauteur, le gaz n'avance pas (figure 3.3(a)), la pression d'huile étant très légèrement supérieure de 1,3 kPa par rapport à celle du gaz. Lorsque l'huile entre dans le canal d'écoulement de $30 \mu\text{m}$ de hauteur et commence à former la goutte (figure 3.3(b)), la courbure de l'interface huile-eau augmente et la pression capillaire diminue jusqu'à devenir négligeable. A ce moment-là, le gaz avance et génère la bulle à l'intérieur de la goutte en train de grossir (figure 3.3(c)).

La figure 3.4(a) est un diagramme spatio-temporel sur lequel il est possible d'observer le mouvement des deux interfaces huile-eau et gaz-huile. La première traverse la marche et la goutte se forme. Elle grossit pendant 27 ms selon la relation : $R_g = a_g \sqrt{t}$ avec $a_g = 9 \mu\text{m}/\text{ms}^{1/2}$. En considérant une goutte de forme cylindrique, $V = \pi R^2 h$ (le diamètre de la goutte dépasse la hauteur h du canal en moins de 3 ms), nous trouvons que le volume d'huile croît linéairement avec le temps. De même pour la bulle, la variation du rayon avec le temps suit la relation : $R_b = a_b \sqrt{t}$ avec $a_b = 50 \mu\text{m}/\text{ms}^{1/2}$, soit un volume proportionnel au temps mais sur une durée bien plus courte, seulement 2 ms. Nous mesurons donc un débit d'huile et un débit de gaz constants pendant la formation respectivement de la goutte et de la bulle.

Dans la figure 3.5, nous montrons en fonction des paramètres Q_e , P_h et P_g , la variation du volume total de chaque double émulsion, celui du gaz et celui de l'huile obtenu en retranchant les deux premiers.

La caractéristique qui revient de façon systématique est que la taille de la double émulsion est principalement déterminée par la taille de la bulle de gaz. De plus, les gammes de pression où les doubles émulsions existent sont extrêmement réduites, avec une marge de seulement 10 %. Les variations en taille des deux composants avec les pressions sont alors très brutales. Les autres résultats principaux sont résumés ici :

- sur la figure 3.5(a), lorsque le débit d'eau augmente (la pression de l'eau augmente avec lui), la taille de la bulle diminue de façon inversement proportionnelle avant de s'effondrer, et la quantité d'huile reste constante ;

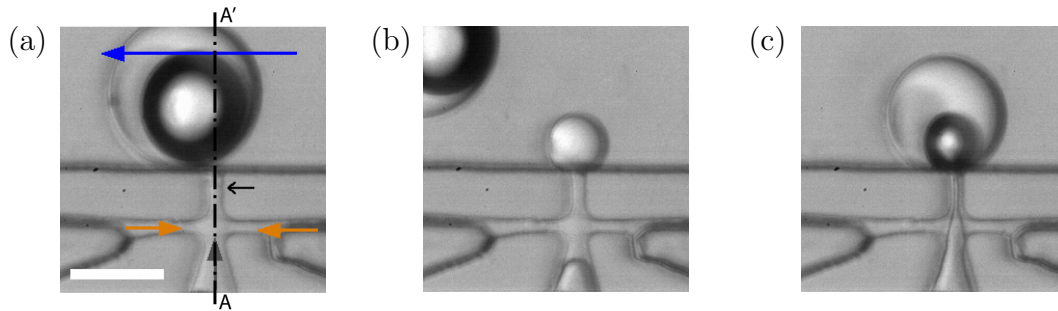


FIGURE 3.3 – Photos des différentes étapes de la formation d’une double émulsion. Les flèches représentent la direction de l’huile en orange, du gaz en gris et de l’eau en bleu, la petite flèche noire indique la position de l’interface huile-eau. (a) Cette interface entre dans le canal d’écoulement pour (b) former la goutte avant que (c) le gaz avance pour inclure une bulle dans la goutte. Les paramètres sont : $Q_e=10 \mu\text{L}/\text{min}$, $P_h=20,3 \text{ kPa}$ et $P_g=19 \text{ kPa}$. La barre blanche représente $100 \mu\text{m}$. Les photos (a) et (b) sont prises avec un intervalle de 20 ms , les photos (b) et (c) avec un intervalle de $0,7 \text{ ms}$.

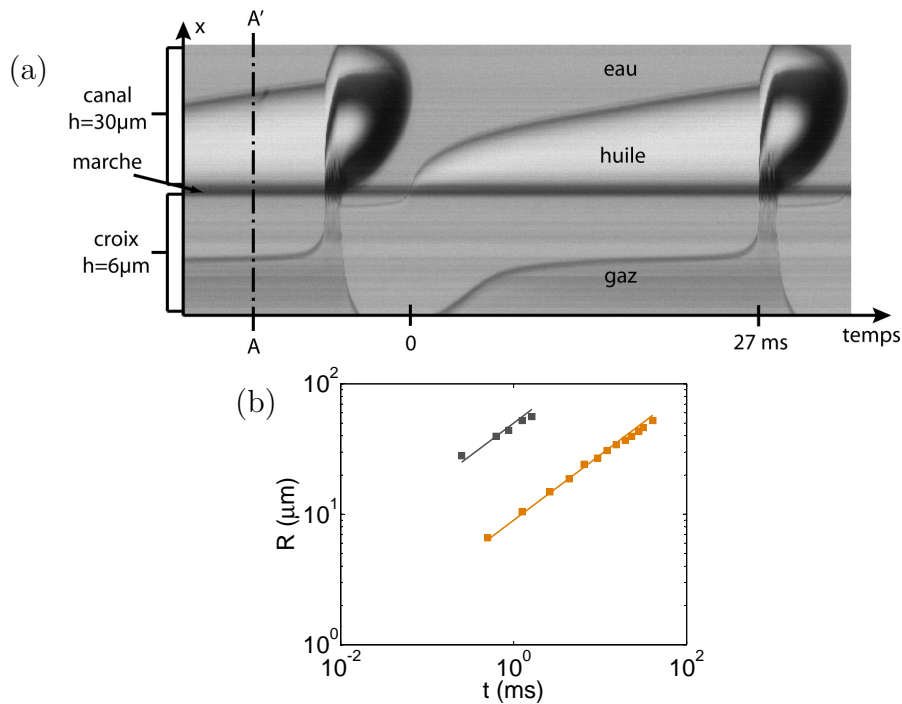


FIGURE 3.4 – (a) Diagramme spatio-temporel de la formation d’une double émulsion. Chaque ligne verticale de l’image est la coupe AA’ de chaque image du film de la figure 3.3. Le déroulement du temps est de gauche à droite, et la progression des interfaces de bas en haut. (b) Vitesses de formation de la goutte en orange et de la bulle en gris mesurées sur (a), le temps $t=0$ étant redéfini pour chacune d’elles au moment où l’interface traverse la marche.

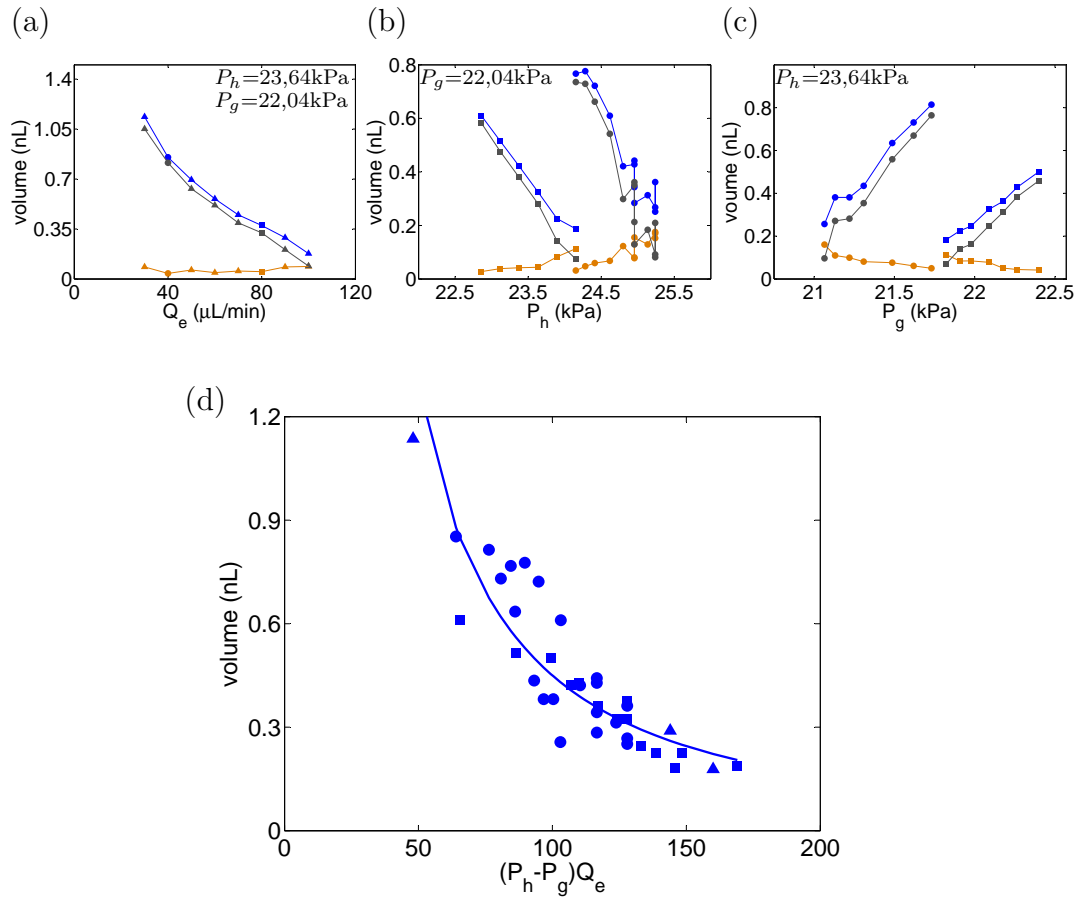


FIGURE 3.5 – Volume du gaz, de l’huile et des doubles émulsions en fonction des paramètres (a) Q_e , (b) P_h et (c) P_g . Sur chaque graphique, deux des trois paramètres restent constants, un seul varie. Les symboles représentent différents débits d’eau : (o) $Q_e = 40 \mu\text{L}/\text{min}$, (\square) $Q_e = 80 \mu\text{L}/\text{min}$, (\triangle) $Q_e = 30, 50, 60, 70, 90$ et $100 \mu\text{L}/\text{min}$. Les couleurs sont celles de la figure 3.3 : le gaz en gris, l’huile en orange, le volume total des doubles émulsions en bleu. (d) Dépendance du volume total en fonction de $(P_h - P_g)Q_e$, la courbe est définie par l’équation (3.1).

- sur la figure 3.5(b), lorsque la pression de l’huile augmente, la taille de la goutte augmente et la quantité de gaz diminue ; avec un débit d’eau plus petit, nous avons besoin ici d’une pression d’huile plus importante pour obtenir une double émulsion de même taille ;
- sur la figure 3.5(c), lorsque la pression du gaz augmente, la taille de la bulle augmente et l’huile diminue ; avec un débit d’eau plus petit, la pression de gaz nécessaire pour obtenir une double émulsion de même taille est cette fois plus petite.

Sur la figure 3.5(d), le volume total d’une double émulsion v_{total} varie comme :

$$v_{total} = a[(P_h - P_g) Q_e]^m \quad (3.1)$$

avec $m = -1,5$ et $a = 450 \text{ nL}/(\text{kPa} \cdot \mu\text{L}/\text{min})^{-1,5}$. Aucun raisonnement n’a pour l’instant été trouvé permettant d’expliquer ces mesures et cette dépendance avec les paramètres expérimentaux.

3.2 Ecoulement des bulles en microcanaux

Nous n’avons pas de moyen de mesurer directement les forces externes que nous appliquons sur les bulles, notamment les forces acoustiques. Nous nous intéressons ici aux forces opposées à leur mouvement. En modélisant le comportement des bulles en écoulement, nous pouvons calculer ces forces résistantes et connaître alors les forces externes que les bulles subissent, quelles qu’elles soient. Le modèle établi en premier lieu est calibré et vérifié en appliquant sur les bulles une force externe et bien connue qu’est la force d’Archimède.

3.2.1 Modélisation de la friction et de la traînée

Les bulles sont en configuration Hele-Shaw : elles s’écoulent entre deux plaques parallèles. Elles sont confinées dans une direction, ici dans la hauteur du canal. Elles ne sont donc pas sphériques et ont une forme de sphère aplatie, comme le montre la figure 2.6. La force qui s’oppose à leur mouvement diffère alors de la force de Stokes pour une sphère : $F = 6\pi\mu R(V - U)$, la bulle n’étant pas tout à fait un cylindre ni une sphère. De plus, elle frotte sur les parois des canaux. Il s’agit d’une friction liquide car il existe un film de lubrification entre le gaz et les parois. La force de traînée a donc deux composantes : la force de Stokes, sur les parois latérales de la bulle, et la friction avec les murs du canal :

$$\vec{F}_{traînee} = \vec{F}_{Stokes} + \vec{F}_{friction} \quad (3.2)$$

Plusieurs études ont été menées sur l’écoulement de bulle dans ce genre de géométrie. Celle de Bretherton [47] concerne la chute de pression dans un tube cylindrique due à une bulle de même taille que celui-ci, Fuerstman *et al.* [48], sur

la figure 3.6(b), a étendu ces résultats à des canaux de section rectangulaire, la bulle touchant les quatre parois, et Maruvada *et al.* [49], sur la figure 3.6(a), a considéré une bulle purement cylindrique entre deux plaques. Ce dernier travail s'inspire d'autres études menées auparavant, notamment celle de Taylor *et al.* [50] dans laquelle la friction sur les parois de la cellule de Hele-Shaw n'était pas prise en compte.

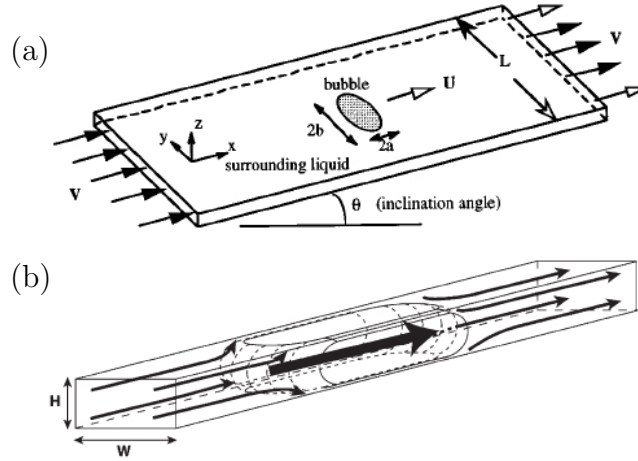


FIGURE 3.6 – Schéma des différentes études menées sur l'écoulement confiné de bulles, (a) celle de Maruvada et (b) celle de Fuerstman.

Force de Stokes

Nous reprenons ici l'expression établie par Maruvada *et al.* pour la traînée visqueuse due au liquide. C'est l'étude qui se rapproche le plus de notre cas, à la différence qu'il considère des bulles purement cylindriques.

$$\vec{F}_{Stokes} = a_S \frac{12\pi\mu R^2}{h} (2\vec{V} - \vec{U}) \quad (3.3)$$

Il s'agit de la force de Stokes pour une bulle cylindrique avec une condition de glissement sur les parois latérales de la bulle. En effet, le gaz a une très faible viscosité. L'écoulement de liquide lui impose sa vitesse par continuité de la composante tangentielle à l'interface. Nous ajoutons un coefficient libre a_S pour prendre en compte une déviation d'une bulle purement cylindrique.

Force de friction

Nous établissons maintenant une équation permettant de calculer la force de friction sur les murs. Nous nous intéressons à la dissipation visqueuse due à la courbure des lignes d'écoulement due aux parois latérales de la bulle. En revanche,

il n'y a pas de dissipation dans le film de lubrification car la vitesse du liquide est constante sur toute son épaisseur, les molécules de surfactant étant supposées tangentiellement immobiles.

Une analyse dimensionnelle montre que la force de friction varie comme : $F_{friction} \sim \mu U/h_F A_F$, h_F étant l'épaisseur du film de lubrification, et A_F l'aire de la zone de friction (voir figure 3.7(a)). Dans le cas de l'eau pure, ou avec des molécules de surfactant très mobiles, ce sont les résultats de Bretherton[47] qui s'appliquent, établissant que l'épaisseur du film de lubrification augmente avec la vitesse comme : $h_F \sim hCa^{2/3}$ (avec $Ca = \mu U/\sigma$), et la zone de friction varie aussi comme : $A_F \sim h^2Ca^{1/3}$. Le tout donne une force de friction variant en $F_{friction} \sim \mu hCa^{-1/3}U$ et donc proportionnelle à $U^{2/3}$. Ceci n'est pas en accord avec l'étude de Maruvada [49] où l'aire de friction a été considérée constante, menant donc à une force de friction proportionnelle à $U^{1/3}$. Dans le cas de molécules de surfactant tangentiellement immobiles à l'interface eau-gaz, la surface est plus rigide. Il a été montré dans une étude de Denkov *et al.* [51] que la dépendance de l'épaisseur du film de lubrification avec le nombre capillaire est modifiée : $h_F \sim hCa^{1/2}$, et la zone de friction présente une aire constante. La force de friction varie donc comme $U^{1/2}$.

Nous établissons une relation incluant ces deux cas, surfactant mobiles et immobiles, en utilisant un coefficient libre α de sorte que $F_{friction} \sim \mu h Ca^{\alpha-1} U \sim U^\alpha$. La valeur de α doit varier entre 1/2 et 2/3 selon la nature des surfactants. Cet exposant variable est largement utilisé dans les études de friction de mousse [52], ou dans le drainage ou la caractérisation rhéologique des mousses [53].

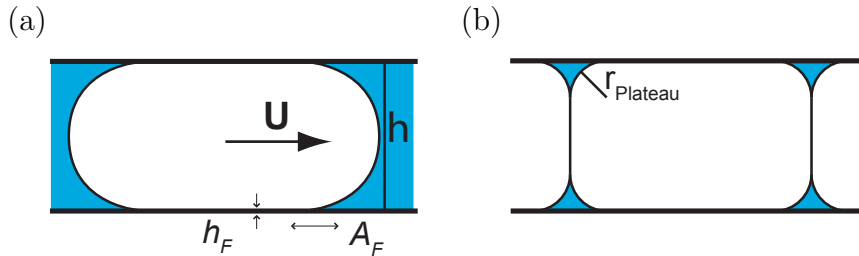


FIGURE 3.7 – Vue en coupe de (a) une bulle isolée et de (b) une mousse d'une seule couche de bulle. Le gaz est en blanc, le liquide en bleu.

Nous introduisons maintenant la dépendance de la dissipation visqueuse dans le ménisque d'eau, avec le rapport entre la taille de la bulle et la hauteur du canal. Ces résultats sont inspirés par les prédictions de Terriac *et al.* [54] pour des bulles en contact, formant une mousse et s'écoulant dans un tube à section rectangulaire. Le rayon du bord de Plateau est la courbure du ménisque d'eau joignant le liquide au mur, illustré sur la figure 3.7(b). Nos bulles ont la même géométrie que celles dans une mousse si l'on considère que la taille de ces bords de Plateau est égale à la demi-hauteur du canal : $r_{Plateau} = h/2$. En effectuant ce changement dans

l'expression établie par Terriac et en ajoutant un paramètre ajustable α_f , nous obtenons cette expression pour la force de dissipation visqueuse :

$$\vec{F}_{friction} = \alpha_f \mu h \left[\left(\frac{h}{R} \right)^3 Ca \right]^{\alpha-1} \vec{U} \quad (3.4)$$

En ajoutant la force de Stokes de l'équation (3.3), à la force de friction sur les parois du canal de l'équation (3.4), nous obtenons l'expression de la force totale de traînée d'une bulle s'écoulant dans une cellule de Hele-Shaw :

$$\vec{F}_{traînee} = a_S \frac{12\pi\mu R^2}{h} (2\vec{V} - \vec{U}) - \alpha_f \mu h \left[\left(\frac{h}{R} \right)^3 Ca \right]^{\alpha-1} \vec{U} \quad (3.5)$$

Cette expression contient trois paramètres ajustables, a_S , a_f et α , qui doivent être déterminés par des expériences.

3.2.2 Calibration par la force d'Archimède

Dans la section précédente, nous avons établi un modèle pour la force de traînée d'une bulle s'écoulant dans un microcanal. L'expression trouvée contient trois paramètres numériques inconnus. Ils peuvent être ajustés en appliquant sur les bulles en écoulement une force bien connue. La force d'Archimède a un effet important sur les bulles à cette échelle et s'applique sur tout leur volume.

Nous pouvons voir sur le schéma de la figure 2.10 qu'elle est appliquée sur l'axe y, transverse à l'écoulement des bulles. A cause du nombre de Reynolds très faible, de l'ordre de 1, nous considérons que l'équilibre avec la force de traînée s'effectue immédiatement : $F_{Archimede} = F_{traînee,y}$. Sur l'axe x, dans la direction de l'écoulement, il n'y a pas de force externe appliquée sur les bulles et l'équilibre des forces implique : $F_{traînee,x} = 0$.

Une première analyse de l'ordre de grandeur des deux termes de la relation de la traînée de la bulle permet de négliger la force de Stokes devant le terme de friction. Le rapport du préfacteur (termes sans les vitesses) de la force de friction sur celui de la force de Stokes varie comme $Ca^{\alpha-1}$, en considérant que $h/R \approx 1$. En se rappelant que les valeurs de α sont censées varier entre 1/2 et 2/3, et que le nombre capillaire est de l'ordre de 10^{-4} (voir section 2.2.1), on voit que la force de friction est de 20 à 100 fois plus importante que la force de Stokes. Nous négligerons donc cette dernière devant le terme de friction.

En projetant sur les axes et en procédant aux simplifications, nous obtenons

finalement le système d'équations suivant :

$$\frac{U_x}{V} = 24\pi \left(\frac{R}{h}\right)^2 \frac{a_S}{a_f} \left[\left(\frac{h}{R}\right)^3 Ca \right]^{1-\alpha} \quad (3.6)$$

$$\frac{\mu h U_y}{F_{Archimede}} = -\frac{1}{a_f} \left[\left(\frac{h}{R}\right)^3 Ca \right]^{1-\alpha} \quad (3.7)$$

avec le nombre capillaire $Ca = \mu U / \sigma$ calculé avec la vitesse totale de la bulle $U = \sqrt{U_x^2 + U_y^2}$. La force d'Archimède est obtenue par la relation : $F_{Archimede} = \Delta\rho \pi R^2 h g \sin\theta$, avec $\Delta\rho = 10^3 \text{ kg/m}^3$ la différence de densité entre l'eau et l'air, $g = 9,8 \text{ m/s}^2$ la constante de pesanteur, θ l'angle d'inclinaison du plan du canal par rapport à l'horizontale (voir figure 2.10), et en considérant un volume cylindrique des bulles.

Il faut donc déterminer les valeurs de trois coefficients avec cinq paramètres de contrôle, R , h , U , V et θ . Le tableau 3.2 résume les gammes de variations des paramètres lors des 65 mesures effectuées. Les résultats sont présentés sur les graphes de la figure 3.8. La force adimensionnée appliquée sur les bulles d'une part, et la vitesse des bulles comparée à celle du liquide d'autre part, sont données en fonction d'une autre quantité sans dimension contenant le nombre capillaire et le rapport $(h/R)^3$. La comparaison directe entre la vitesse des bulles U_x et celle du liquide V en fonction du nombre capillaire est donnée dans la même figure.

R	35 - 90 μm
h	50 - 100 μm
U	1 - 60 mm/s
V	5 - 50 mm/s
θ	20 - 90 $^\circ$
$F_{Archimede}$	2 - 20 nN

TABLE 3.2 – Tableau récapitulant la gamme de variation des paramètres de contrôle et l'amplitude des forces d'Archimède explorée.

Le modèle semble cohérent car tous les points se rassemblent sur une seule courbe pour la projection sur chaque axe, transverse et longitudinal. Nous sommes alors en mesure de fixer la valeur des coefficients : $\alpha = 0,51$, $a_f = 10,9$ et $a_S = 4,53$. Le modèle établi prend donc bien en compte tous les paramètres géométriques et dynamiques. Seules les dépendances avec la viscosité et la tension de surface n'ont pas été testées. Le résultat général de ces mesures est une réduction de la friction sur les murs à nombre capillaire croissant, avec un rapprochement de la vitesse des bulles vers la prédiction de Saffman-Taylor (insert de la figure 3.8) : $U_x = 2V$.

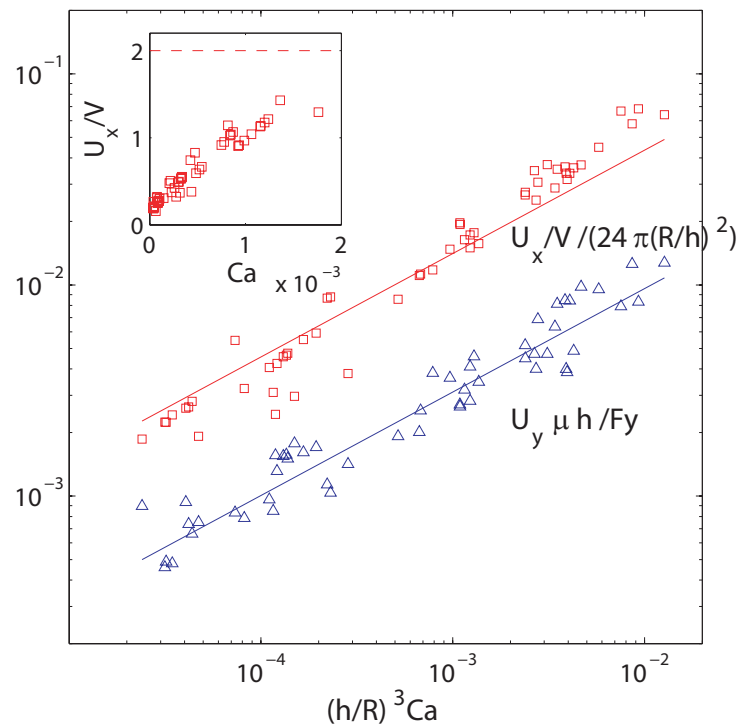


FIGURE 3.8 – Vitesses adimensionnées U_x (en rouge) et U_y (en bleu), en fonction de $(h/R)^3 Ca$. Les paramètres pour les ajustements des équations (3.7) et (3.7) sont $\alpha=0,51$, $a_f=10,9$ et $a_S=4,53$. En insert, vitesse longitudinale des bulles comparée à la vitesse du liquide V , en pointillés le modèle de Saffman-Taylor qui néglige la friction sur les murs de la cellule de Hele-Shaw ($a_f=0$).

La relation de traînée d'une bulle s'écoulant dans un microcanal et subissant une force sur l'axe transverse à l'écoulement prend finalement cette forme :

$$F_{traînee,y} = 10,9 \mu h \left[\left(\frac{h}{R} \right)^3 Ca \right]^{-0,49} U_y \quad (3.8)$$

3.2.3 Discussion

Nous discutons ici les valeurs des coefficients a_S et α . La valeur de a_f n'est pas révélatrice car des facteurs numériques ont été omis lors des calculs de la force de friction.

Selon l'étude de Denkov[51], la valeur de α , l'exposant du nombre capillaire, reflète la nature des surfactants. Avec une valeur très proche de 0,5, nous aurions ici des molécules immobiles à la surface des bulles. Cela peut se concevoir par la très haute concentration de surfactant dans l'eau, nous sommes ici à 40 fois la concentration micellaire critique. La mobilité des molécules est importante car elle gouverne la nature de la friction et de la traînée.

D'autre part, la valeur de $a_S = 4,53$ est supérieur à 1. Ceci montre que la traînée visqueuse due à l'écoulement de liquide autour de la bulle est plus importante que prévue. Cela peut venir de la condition de glissement du liquide sur les parois de la bulle qui n'est pas respectée. En effet, si les molécules de surfactants sont tangentiellement immobiles, cela peut modifier la force de traînée visqueuse. De plus, cette force a été établie depuis le début en considérant le volume des bulles purement cylindrique. Or nous savons que ce n'est pas le cas. La courbure de l'interface dans l'épaisseur du canal peut induire une dissipation plus importante que si elle était plane.

3.3 Conclusion

Lors de ce chapitre, nous avons étudié le processus de formation d'une double émulsion avec le principe de la marche, l'influence des paramètres de contrôle sur le volume des deux constituants huile et gaz, et nous avons modélisé l'écoulement des bulles dans les microcanaux.

Selon les fluides et surfactants utilisés, nous avons montré que les doubles émulsions doivent être des particules Janus, ce que nous avons observé expérimentalement. Nous avons décrit en détail le processus de formation d'une double émulsion avec le mouvement des différentes interfaces. La vitesse de croissance du volume de l'huile et du gaz montre un débit constant pendant la formation de la double émulsion. Nous avons observé des dépendances surprenantes des volumes de gaz et d'huile obtenus en fonction des différents paramètres. La relation que nous avons trouvée entre le volume total de la double émulsion et les paramètres de l'expérience n'a pour l'instant pas d'explication.

Nous avons trouvé des études seulement partielles sur l'écoulement des bulles en milieu confinée. Nous nous en sommes inspirés pour établir un nouveau modèle prenant en compte la force de Stokes et la force de friction. Nous l'avons vérifié expérimentalement avec succès en appliquant sur les bulles la force d'Archimède, ce qui nous a permis d'ajuster des paramètres libres.

Nous pouvons continuer en perspective l'étude sur la formation des doubles émulsions utilisant le principe de la marche pour trouver un raisonnement sur la dépendance avec les paramètres et les principes physiques qui la régissent. De plus, la force de traînée n'a pas été étudiée pour les doubles émulsions. Elle sera probablement recherchée plus tard.

Grâce à la relation de la force de friction, en mesurant la taille et la vitesse d'une bulle, nous pouvons calculer la force de traînée et donc connaître n'importe quelle force appliquée sur elle dans la direction transverse à l'écoulement. Dans le chapitre suivant, la force de gravité sera remplacée par la force acoustique dont l'amplitude pourra alors être mesurée.

Chapitre 4

Microbulles : manipulation acoustique

Nous étudions dans ce chapitre la force de Bjerknes. C'est une force acoustique particulièrement importante qui survient lorsque les bulles sont excitées à leur fréquence de résonance. Cette force a des propriétés très particulières, remarquablement différentes d'une force de pression de radiation. Toute la théorie de l'interaction entre une onde acoustique et une bulle sphérique est donnée de façon exhaustive dans le livre de Leighton [7]. Nous la reprenons cependant pour étudier l'effet du confinement des bulles. Nous essayons par la suite de développer des applications pour les laboratoires sur puce utilisant ce principe.

Dans une première partie, après avoir présenté la bulle comme un oscillateur mécanique, nous généralisons cette théorie à des bulles cylindriques, modèles de nos bulles confinées. Nous exposons ensuite les mesures expérimentales de cette force qui vérifie le modèle théorique. Nous exposons dans une deuxième partie quatre applications que nous avons imaginé : le tri en taille, la division asymétrique contrôlée, l'aiguillage automatique à une bifurcation et la manipulation de goutte.

4.1 La force de Bjerknes

4.1.1 Modélisation de la bulle par un oscillateur

La résonance d'une bulle

Lorsqu'une bulle est excitée par des ultrasons, son volume pulse. Le gaz à l'intérieur est comprimé par l'onde de pression. Lorsque la pression diminue, la bulle reprend son volume normal. Mais pour pulser, la bulle doit pousser une certaine quantité de liquide qui l'entoure. Son comportement est alors analogue à celui d'un oscillateur mécanique dont le liquide joue le rôle de la masse, et la compressibilité du gaz celui du ressort, principe illustré sur la figure 4.1.

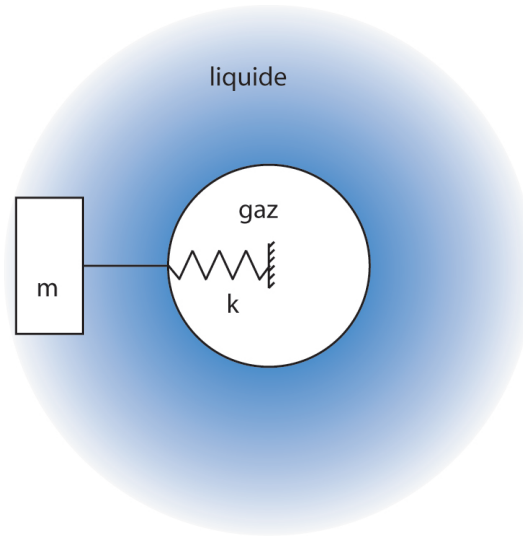


FIGURE 4.1 – Modélisation de la bulle par un système masse-ressort.

La fréquence de résonance d'un tel système est régie par une relation trouvée en premier lieu par Minnaert[2]. Il l'a obtenue en égalant l'énergie cinétique de l'interface à l'énergie du gaz à l'intérieur de la bulle, en équilibre thermodynamique. Les hypothèses faites pour dériver cette relation étaient une pulsation harmonique simple (vrai à faible amplitude), pas d'effet de tension de surface (qui apparaissent pour des tailles de l'ordre du micromètre) et des pertes négligeables. Ces pertes dissipatrices sont de natures visqueuses, thermiques et radiatives. Dans le cas de bulle sphérique dans de l'eau, cette relation prend une forme mémorable : $f_{res} \cdot R = 3 \text{ m/s}$, f_{res} étant la fréquence de résonance. Par exemple, pour des bulles de $30 \mu\text{m}$ de rayon, cela donne une fréquence de résonance de 100 kHz. En calculant le rapport $R/\lambda = 1/500$, nous observons que les bulles sont en résonance avec des longueurs d'onde acoustique bien plus grande qu'elles.

Prosperetti [5] a généralisé la relation de Minnaert à N dimensions, obtenant la fréquence de résonance d'une bulle cylindrique ($N = 2$). Dans notre cas, cette relation se résume à : $f_{res} \cdot R = 1,3 \text{ m/s}$. Donc, pour un même rayon apparent, une bulle cylindrique a une fréquence de résonance plus faible que dans le cas sphérique. Ici, les bulles sont confinées et ne sont pas sphériques. Mais elles ne sont pas non plus totalement cylindriques (voir figure 2.6). Nous assumons donc pour la suite la relation suivante entre le rayon et la fréquence de résonance :

$$f_{res} \cdot R = K \quad (4.1)$$

laissant K comme paramètre numérique indéterminé, avec une valeur a priori comprise entre 1,3 et 3. Lors des calculs de la force acoustique, nous utilisons la relation inverse, celle qui lie la fréquence d'excitation f fixe dans les expériences, au rayon de la bulle R qui est alors une variable : $f \cdot R_{res} = K$. Cela permet d'exprimer la force uniquement en fonction de la taille de la bulle.

La force de Bjerknes à la résonance

La force de pression exercée sur un objet petit comparé à la longueur d'onde (ici $R/\lambda = 1/500$) s'écrit : $\int_S -P\vec{n} dS = -V(t)\vec{\nabla}P(t)$, selon le gradient de pression $\vec{\nabla}P(t)$ considéré constant sur la taille de la bulle. C'est une force oscillante dont nous calculons la moyenne temporelle sur une période d'oscillation :

$$\vec{F}_{Bjerknes} = \left\langle -V(t)\vec{\nabla}P(t) \right\rangle \quad (4.2)$$

Cette force, qui dépend à la fois de la variation du volume de l'objet et de la variation du gradient de pression, s'appelle la force de Bjerknes [1]. Dans le cas de particules solides, leur volume ne varie pas et cette moyenne est nulle sur une période. En revanche, dans le cas des bulles où le volume varie de façon non négligeable lorsqu'elles sont excitées proche de leur fréquence de résonance, nous obtenons une force très importante comparée à la simple force de pression de radiation.

Pour obtenir une expression plus détaillée, nous considérons une source d'onde acoustique stationnaire de longueur d'onde λ_s , et étendue dans la direction y :

$$P(y, t) = P_0 + P_A \sin(k_s y) \cos(\omega t) \quad (4.3)$$

$\omega = 2\pi f$ étant la pulsation, $k_s = 2\pi/\lambda_s$ le nombre d'onde du champ acoustique, P_0 la pression de référence dans le liquide et P_A l'amplitude de l'onde. Ce champ acoustique correspond à celui émis par le barreau en verre du dispositif expérimental. Il est à noter que le nombre d'onde du champ émis k_s diffère de celui des ultrasons dans l'eau k .

Nous définissons ensuite la variation du rayon et du volume comme :

$$R_{osc}(y, t) = R [1 - \varepsilon \sin(k_s y) \cos(\omega t + \varphi)] \quad (4.4)$$

$$V(y, t) = V_{0,N} [1 - N \varepsilon \sin(k_s y) \cos(\omega t + \varphi)] \quad (4.5)$$

R et $V_{0,N}$ étant le rayon et le volume à l'équilibre, ε l'amplitude d'oscillation considérée comme faible, et N égal à 2 ou 3 selon que nous considérons un volume à 2 dimensions (cylindrique $V_{0,2} \simeq \pi R^2 h$), ou à 3 dimensions (sphérique $V_{0,3} = 4/3 \pi R^3$).

Il est connu qu'un oscillateur répond avec un certain retard à l'excitation. Cela se traduit par un déphasage φ qui varie entre 0 et π , selon qu'il est excité avec une fréquence plus petite ou plus grande que sa fréquence de résonance ω_{res} . Son expression pour un oscillateur amorti est donnée selon Leighton [7] par :

$$\cos \varphi = \frac{\omega_{res}^2 - \omega^2}{\sqrt{(\omega_{res}^2 - \omega^2)^2 + (\omega\omega_{res}/Q)^2}} \quad (4.6)$$

La figure 4.2 montre que la variation de φ avec ω est assez soudaine si le facteur de qualité Q est grand. Pour un système peu amorti, la variation est plus douce. Nous notons aussi que ce déphasage est nul à la fréquence de résonance.

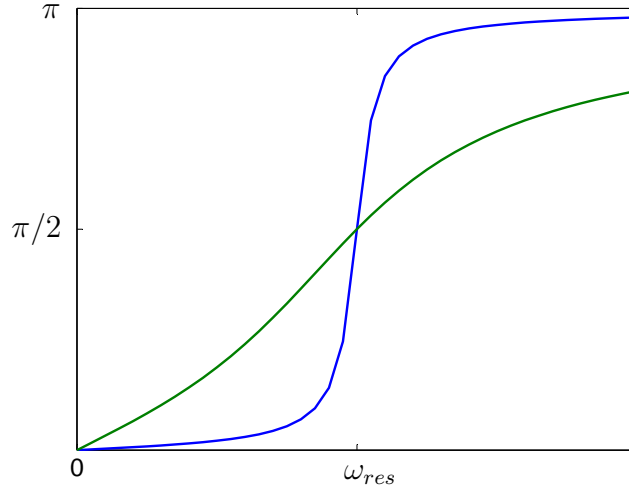


FIGURE 4.2 – Variation du déphasage d’un oscillateur en fonction de la fréquence d’excitation pour 2 facteurs de qualité différents $Q = 10$ en bleu, et $Q = 1$ en vert.

Nous calculons le gradient de pression selon : $\nabla P = \partial P / \partial y$ en utilisant l’équation (4.3) comme définition de l’onde de pression. En l’injectant avec l’équation (4.5) dans (4.2), nous trouvons une expression pour la force de Bjerknes :

$$F_{Bjerknes} = P_A V_{0,N} N \varepsilon k_s \frac{\sin(2k_s y)}{2} \frac{\cos \varphi}{2} \quad (4.7)$$

Nous notons que la force de Bjerknes est directement proportionnelle au cosinus de la différence de phase φ . Lorsque les bulles sont plus grandes que la taille de résonance, ce qui est équivalent à une fréquence d’excitation plus grande que leur fréquence de résonance ($\omega > \omega_{res}$ ou $R > R_{res}$), elles répondent avec un déphasage de π et la force est négative par rapport au gradient de pression. Les bulles sont attirées vers les zones de plus faible gradient, c’est-à-dire les noeuds de pression. En revanche, pour des bulles plus petites que la taille de résonance ($\omega < \omega_{res}$ ou $R < R_{res}$), la force change de signe et les bulles sont alors attirées vers les ventres de pression. Ceci est surprenant, il est contre-intuitif de penser qu’un objet est attiré vers une zone où la pression est maximale. Les graphes de la figure 4.3 illustrent ce raisonnement.

Nous pouvons obtenir une expression encore plus précise de la force de Bjerknes en calculant l’amplitude des oscillations. A partir de l’équation de Navier-Stokes, Prosperetti [5] a dérivée l’équation de Rayleigh-Plesset à N dimensions. Cette équation décrit le mouvement radial d’une interface liquide-gaz. En considérant l’amplitude des oscillations petites, on arrive à une équation décrivant un oscil-

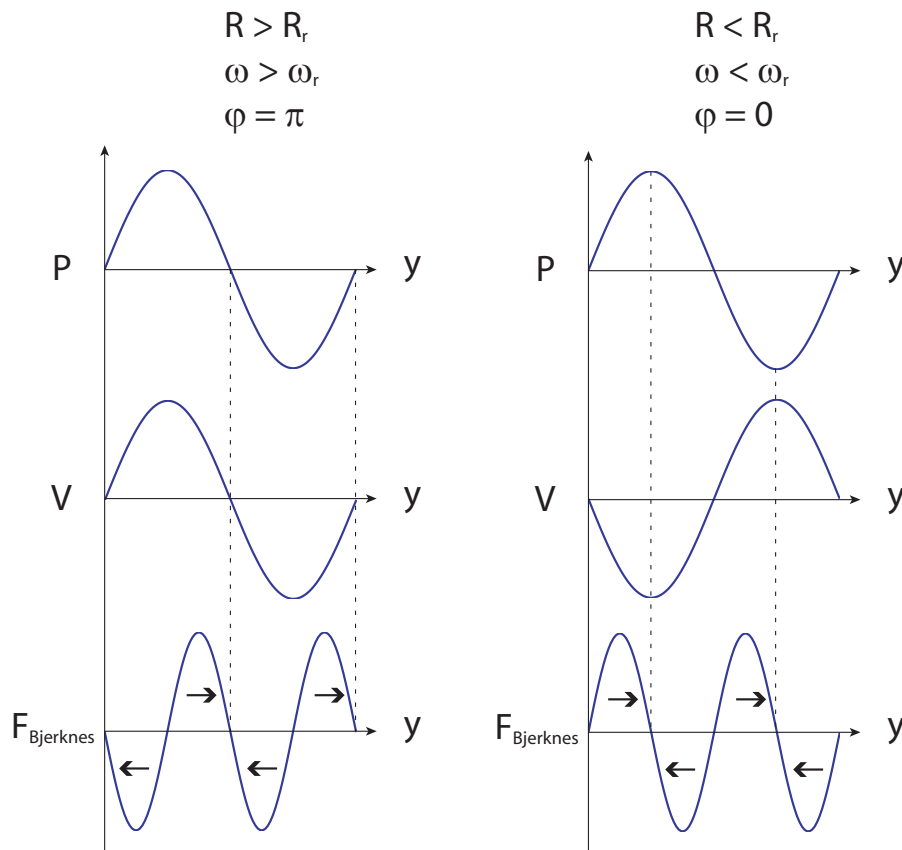


FIGURE 4.3 – Graphes illustrant le changement de signe de la force de Bjerknes selon la taille de la bulle. Les flèches indiquent la direction de la force. Les bulles plus petites que la taille de résonance répondent avec un déphasage φ de 0 et sont attirées vers les ventres de pression. Contrairement aux bulles plus grandes que la taille de résonance qui répondent avec un déphasage de π et qui sont attirées vers les noeuds de pression.

lateur forcé et amorti :

$$\ddot{X} + 2b \dot{X} + w_0^2 X = \frac{N-2}{1-(R/S)^{N-2}} \frac{P_A}{\rho R^2} \cos(\omega t) \quad (4.8)$$

avec $X = \varepsilon \sin(k_s y) \cos(\omega t)$, et S la limite maximale que le rayon de la bulle peut prendre, R/S représente le confinement de la bulle (S peut être égal par exemple à la moitié de la largeur des microcanaux). Nous considérons un faible confinement tel que $(N-2)/(1-(R/S)^{N-2}) \simeq 1$, nos bulles étant loin des bords des microcanaux. La solution de cette équation nous donne la valeur de l'amplitude ε et de la tangente du déphasage φ dont le cosinus est donné plus haut (eq.(4.6)) (détails des calculs p.291-292 de [7]) :

$$\varepsilon = \frac{P_A}{\rho R^2} \frac{1}{\sqrt{(\omega_{res}^2 - \omega^2)^2 + (2b \omega)^2}} \quad (4.9)$$

Le facteur d'amortissement b peut être exprimé en fonction du facteur de qualité : $2b = \omega_{res}/Q$, en faisant l'approximation que l'amortissement ne dépend pas de la fréquence.

Finalement, nous remplaçons les expressions de V_0 (4.5) et de ε (4.9) dans l'équation (4.7) pour trouver la force de Bjerknes pour des bulles cylindriques et sphériques :

$$F_{Bjerknes}^{2D} = \frac{\pi h}{2} \frac{k_s P_A^2 \sin(2k_s y)}{\rho \omega^2} \frac{(\omega_{res}/\omega)^2 - 1}{[(\omega_{res}/\omega)^2 - 1]^2 + (\omega_{res}/Q\omega)^2} \quad (4.10)$$

$$F_{Bjerknes}^{3D} = \pi R \frac{k_s P_A^2 \sin(2k_s y)}{\rho \omega^2} \frac{(\omega_{res}/\omega)^2 - 1}{[(\omega_{res}/\omega)^2 - 1]^2 + (\omega_{res}/Q\omega)^2} \quad (4.11)$$

Nous remarquons que ces deux expressions sont identiques, à l'exception du premier terme qui prend en compte des aspects géométriques. La force en 2D est proportionnelle à la demi-hauteur du canal, alors que celle en 3D varie linéairement avec le rayon de la bulle. La dépendance avec les paramètres du champ acoustique et la valeur du déphasage sont les mêmes. En revanche, la relation entre la fréquence de résonance ω_{res} et le rayon de la bulle R peut changer selon que nous considérons une bulle cylindrique ou sphérique. Nous faisons par la suite un raisonnement général en utilisant la relation (4.1).

4.1.2 Mesures de la force acoustique à la résonance

Nous effectuons plusieurs expériences en appliquant le champ acoustique stationnaire émis par le barreau en verre résonant sur des bulles s'écoulant dans le microcanal. La force acoustique est dans la direction du gradient de pression qui est sur l'axe y . Les bulles subissent une force acoustique et sont déviées perpendiculairement à l'écoulement. Il n'y a aucune force sur cet axe, ni d'écoulement

de liquide uniquement selon l'axe x . Nous pouvons alors assumer que l'équilibre se fait entre la force acoustique et la force de traînée : $F_{Bjerknes} = F_{traînee}$. Cette dernière a été modélisée et calibrée dans le chapitre précédent. Elle est donnée par l'équation 3.8. En mesurant donc le rayon des bulles et leur vitesse transverse U_y , nous sommes en mesure de calculer la force acoustique que nous appliquons.

Nous avons montré dans la section précédente que la force change de signe avec la taille des bulles pour une fréquence d'excitation fixée. Les mesures expérimentales de la figure 4.4 montrent effectivement cette caractéristique. La fréquence d'excitation est de $f = 91$ kHz. Les bulles de rayon supérieur à $22 \mu\text{m}$ sont déviées sur la droite par rapport à l'écoulement, alors que celles plus petites vont vers la gauche. En comparant avec le diagramme des modes de résonance du barreau en verre (figure 2.11), nous confirmons que ce sont les plus petites bulles qui sont attirées par les ventres de pression, et les plus grandes vers les noeuds. Nous obtenons ainsi la taille de résonance pour cette fréquence d'excitation : $R_{res} = 22 \mu\text{m}$. Nous notons aussi la valeur très importante de l'amplitude, autour de cent nanoNewtons, cinq ordres de grandeurs plus grand que le piégeage de bulle par pince optique de quelques picoNewtons [55].

Pour comparer les mesures aux prédictions théoriques, il faut modifier les relations (4.10) et (4.11) trouvées au paragraphe précédent pour les exprimer avec R comme seule variable. Premièrement, la fréquence de résonance ω_{res} peut être remplacée par K/R , selon l'équation (4.1), pour obtenir l'expression des forces en fonction du rayon. Deuxièmement, ne connaissant pas la valeur de la pression, nous faisons apparaître explicitement la densité d'énergie acoustique d'une onde stationnaire : $E_A = P_A^2 \sin(2k_s y) / 4\rho c^2$, $c = 1500$ m/s étant la vitesse des ultrasons dans l'eau. C'est un paramètre ajustable aux données expérimentales et exprimé en J/m^3 . Finalement, nous exprimons le nombre d'onde de la source $k_s = \omega / c_{Lamb}$ en fonction de la fréquence et de la vitesse des ondes de Lamb à la fréquence considérée, obtenue grâce à la figure 2.11(b). Nous obtenons alors les relations suivantes :

$$F_{Bjerknes}^{2D} = 2\pi h E_A^{2D} \frac{c^2}{\omega c_{Lamb}} \frac{(K/R\omega)^2 - 1}{[(K/R\omega)^2 - 1]^2 + (K/RQ^{2D}\omega)^2} \quad (4.12)$$

$$F_{Bjerknes}^{3D} = 4\pi R E_A^{3D} \frac{c^2}{\omega c_{Lamb}} \frac{(K/R\omega)^2 - 1}{[(K/R\omega)^2 - 1]^2 + (K/RQ^{3D}\omega)^2} \quad (4.13)$$

Les paramètres ajustables E_A , et Q sont définis pour chaque cas. Il n'y a en revanche qu'une seule relation liant la fréquence et la taille de résonance, là où la force s'annule. K n'a donc qu'une seule valeur possible. Nous pouvons alors tracer les prédictions théoriques en fonction de l'unique variable R . Les résultats sont comparés aux mesures sur la figure 4.4.

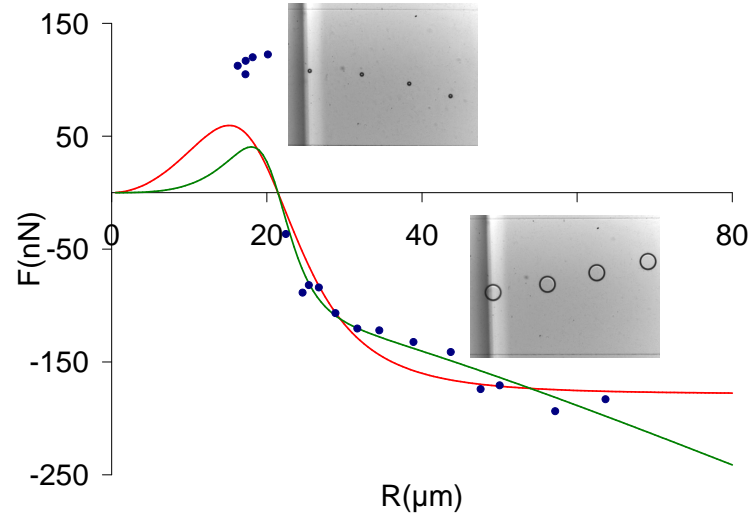


FIGURE 4.4 – La force de Bjerknes en nanoNewtons, en fonction du rayon des bulles en micromètres. Les points sont les mesures expérimentales, les courbes rouge et verte, sont les équations (4.12) et (4.13) avec les paramètres $K=1,95$ m/s, $E_A^{2D}=0,5$ J/m³ et $Q^{2D}=1$, $E_A^{3D}=0,1$ J/m³ et $Q^{3D}=2$. La fréquence est fixée à $f=91$ kHz, la hauteur du canal $h=25$ μm, et c_{Lamb} à 900 m/s.

L'expression de la force de Bjerknes pour une bulle sphérique, l'équation 4.13, diffère de celle donnée dans [7] (p.347). Ici, la source d'ultrasons est étendue dans une direction de l'espace et le gradient de pression fait intervenir le nombre d'onde k_s de l'onde stationnaire dans le barreau en verre résonant, différent de celui des ultrasons dans l'eau k .

Discussion

Le modèle produit une bonne phénoménologie de cette force acoustique. La force est positive pour les petits rayons, négative pour les grands, et s'annule quand les bulles sont excitées exactement à leur fréquence de résonance ($\varphi = \pi/2$). L'accord n'est cependant pas parfait, il y a un écart entre les prédictions et les mesures pour les petits rayons.

La différence entre les deux courbes pour des bulles sphériques et cylindriques n'est pas significative dans cette gamme de rayon. Pour déterminer si un modèle est plus adapté, il faudrait mener des expériences avec des tailles de bulles plus importantes ou avec des hauteurs de canaux différentes.

La valeur de K implique la relation suivante entre le rayon et la fréquence de résonance : $f_{res} \cdot R = 1,95$ m/s. C'est une valeur qui se place entre le cas 2D ($K = 1, 3$) et le cas 3D ($K = 3$). C'est peut-être la signature de la pulsation de la

bulle à partir de sa vraie forme, n'étant pas tout à fait une sphère ni un cylindre.

Les valeurs de E_A^{2D} et E_A^{3D} permettent de remonter à la valeur de l'amplitude de l'onde de pression : $P_A^{2D} \sin(2k_s y) = 670$ mbar et $P_A^{3D} \sin(2k_s y) = 300$ mbar. Ce sont des valeurs relativement élevées, inférieures mais proche d'un bar. Effectivement, des bulles de cavitation ont été vues à plusieurs reprises dans les canaux, signe que la pression acoustique est proche de 1 bar en amplitude.

Nous comparons l'ordre de grandeur de cette force acoustique à la résonance à la force de pression de radiation sur une particule solide. La relation (4.14) donne la variation de la force de Bjerknes avec E_A , et la relation (4.15) donne la force acoustique sur une particule solide de même taille, calculée par King [56] :

$$\frac{F_{Bjerknes}}{\pi R^2} \sim \frac{2E_A}{\pi} \frac{\lambda}{R} \frac{c}{c_{Lamb}} \simeq 500 E_A \quad (4.14)$$

$$\frac{F_{King}}{\pi R^2} \sim 2\pi \frac{R}{\lambda} E_A \simeq 0,01 E_A \quad (4.15)$$

La force de pression de radiation sur la particule solide est quatre ordres de grandeur plus faible que la force de Bjerknes à la résonance de la bulle. On peut aussi dire que la section efficace d'une bulle excitée à la résonance est égale à 500 fois sa section géométrique : $F = 500 \pi R^2 E_A$, contrairement à une particule solide qui finalement interagit peu avec une onde acoustique, avec une section efficace 100 fois plus petite que sa section géométrique.

4.2 Applications aux laboratoires sur puce

Nous sommes capable d'appliquer sur les bulles la force de Bjerknes. Cette force a une magnitude très importante et a des propriétés très particulière. Nous décrivons ici les applications que nous avons développées pour utiliser ces caractéristiques dans le cadre des laboratoires sur puce : le tri en taille, la division asymétrique contrôlée et l'aiguillage, et la manipulation de gouttes.

4.2.1 Le tri en taille

L'idée ici est de trier les bulles selon leur taille. La force de Bjerknes exerce sur les bulles une force qui peut changer de signe, ou de sens, selon qu'elles sont plus grandes ou plus petites que la taille de résonance, déterminée par la relation (4.1). Par exemple, dans la section précédente, nous avons montré qu'à une fréquence acoustique de 91 kHz, les bulles plus grandes que 22 μm de rayon sont déviées vers la gauche par rapport au sens de l'écoulement, et celles plus petites que cette taille critique sont déviées vers la droite. Il suffit ensuite de récupérer les bulles de chaque côté du canal en ajoutant une bifurcation. La sensibilité est très grande : des bulles de 20 et 22,5 μm de rayon ont subi une force de signe différent (voir

figure 4.4). Il est donc possible de développer un principe de tri en taille très efficace et très sensible.

En pratique, la situation n'est pas si simple. Nous avons essayé de produire des bulles de deux tailles différentes en utilisant deux générateurs de bulles qui débouchent dans le même canal d'écoulement. Ce principe a déjà été utilisé dans d'autres études de micro-émulsions [57]. Dans notre cas, les deux générateurs étaient fortement couplés et il s'est révélé extrêmement laborieux de produire indépendamment 2 populations de bulles de tailles différentes. Une possibilité aurait été d'utiliser la méthode de division asymétrique contrôlée, décrite dans le paragraphe suivant.

L'autre obstacle que nous avons rencontré est la forte interaction acoustique entre les bulles. Ces interactions ont été étudiées en détails et sont exposées dans le chapitre 5. L'un des résultats de ces forces d'interaction acoustique est une forte attraction entre les bulles sous champ acoustique. Et il s'est révélé que ces forces secondaires peuvent avoir une magnitude supérieure à la force de Bjerknes primaire. Il est alors impossible de trier les bulles indépendamment.

4.2.2 La division asymétrique contrôlée et l'aiguillage

La division asymétrique contrôlée

Une application avait déjà été démontrée dans la thèse de Raven [14] concernant la division asymétrique contrôlée d'une bulle en deux autres bulles. C'est une application qui permet d'obtenir deux bulles de tailles distinctes à partir d'une seule grâce aux forces acoustiques.

Une bulle de taille proche de la largeur du canal se divise en arrivant à une bifurcation en deux bulles distinctes, chacune d'elles s'écoulant dans une branche différente (figure 4.5(b)). En la poussant par la force acoustique vers une des deux branches de la bifurcation, vers la droite dans le sens de l'écoulement dans les figures 4.5(c) et (d), la bulle se divise de façon asymétrique. Cette asymétrie peut être contrôlée en ajustant l'amplitude des ondes acoustiques, c'est-à-dire en modifiant l'amplitude du signal électrique envoyé au piézoélectrique.

La dispersion des mesures des volumes de chaque bulle sur la figure 4.5(a) montre que cette technique ne semble pas permettre d'obtenir 2 tailles de bulles bien contrôlées. C'est en revanche suffisant pour obtenir une population bidisperse de bulles micrométriques.

L'aiguillage automatique

Nous utilisons ce principe de déviation par des ondes acoustiques pour développer une application d'aiguillage d'une bulle à une bifurcation, toujours dans le

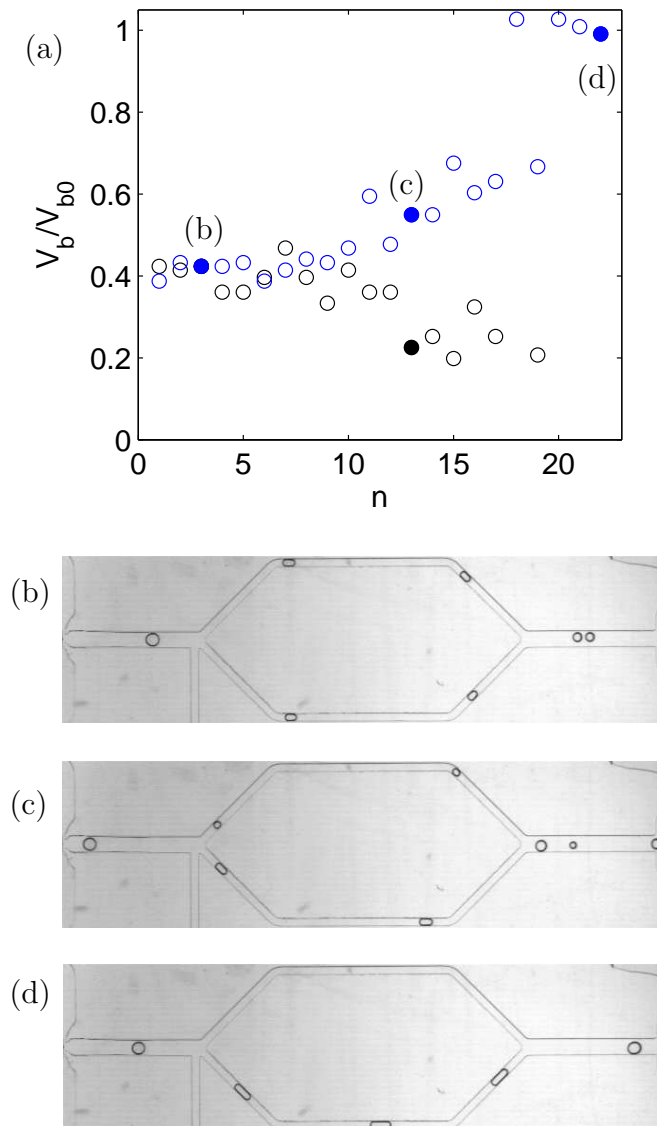


FIGURE 4.5 – Division asymétrique contrôlée d’une bulle à une bifurcation en augmentant l’amplitude des ultrasons par pas, allant de 0 à 30 V, figure tirée de [14]. (a) Taille de bulle, normalisée par le volume de la bulle avant la division V_{b0} , en fonction du numéro de bulle n . Les symboles bleus correspondent aux bulles dans la branche de droite. Pour une amplitude des ultrasons croissante, on observe : (b) $V=0$, écoulement non perturbé, la bulle se divise en deux parties égales ; (c) V intermédiaire, division asymétrique, la partie la plus grande s’écoule dans la branche de droite ; (d) $V=30$ V, pas de division, les bulles sont entièrement déviées dans la branche de droite. La fréquence des ultrasons est fixée à $f=143$ kHz, les paramètres de l’écoulement sont : $Q_e=250 \mu\text{L}/\text{min}$, $P_g=3,90$ kPa.

cadre des laboratoires sur puce. Nous venons de montrer que si l'amplitude des ultrasons est suffisamment importante, et en choisissant correctement la fréquence, la bulle est totalement déviée dans une des branches de la bifurcation. En utilisant une autre fréquence, nous excitions un autre mode de résonance du barreau en verre de telle sorte que les bulles soient attirées dans l'autre branche. En envoyant l'une ou l'autre de ces deux fréquences, nous avons le choix du trajet que la bulle prend.

Nous ajoutons au système expérimental une étape de détection des bulles, avant leur aiguillage. Ceci est fait au moyen d'un faisceau laser (arrivant par une fibre optique posée sur le PDMS dessus le dispositif microfluidique et alignée avec le canal quelques millimètres avant la bifurcation), et d'une photodiode placée exactement dessous le faisceau, pour mesurer la lumière diffusée par le passage des bulles. Le schéma du dispositif est présenté sur la figure 4.6(a) et (b). Le signal produit par la photodiode est analysé par un ordinateur pour détecter le passage des bulles. Un "temps de vol" des bulles avant d'atteindre la bifurcation est fixé à la main, avant que l'ordinateur envoie un signal avec l'une des deux fréquences au piézoélectrique. Nous pouvons ainsi programmer la séquence de fréquence à envoyer, et ainsi décider de dévier de façon automatique un certain nombre de bulles dans chaque branche.

Les figures 4.6(c) et (d) présentent les résultats d'un test d'aiguillage de trois bulles déviées alternativement dans la branche de gauche puis dans celle de droite. Nous obtenons donc un groupe de trois bulles qui passent dans la branche de gauche, puis les trois bulles suivantes vont dans celle de droite, et la séquence se répète. Le temps entre chaque bulle au moment de l'émission (premier histogramme) montre un pic élargi à $T_1 = 70$ ms. Cela montre que les bulles sont générées à une fréquence autour de 15 bulles/seconde et de façon instable. Les deux histogrammes suivants montrent le temps de passage dans chaque branche. Le pic à 70 ms révèle la distance entre les bulles d'un même groupe (le temps T_1), et celui à $T_2 = 270$ ms $\simeq 4 T_1$ montre le temps entre chaque groupe de trois bulles passant dans la branche.

Ce système montre une très grande fiabilité. Les bulles commencent à se gêner lorsqu'elles sont à moins de trois diamètres de distance. Lors de l'expérience de la figure 4.6 où les bulles n'étaient séparées que de deux diamètres, une seule erreur a été repérée sur 192 bulles correctement aiguillées. De plus, la fréquence d'aiguillage peut être très importante, jusqu'à 20 bulles par seconde.

4.2.3 La manipulation de gouttes

Les gouttes ne réagissent presque pas aux ultrasons. Le liquide étant très peu compressible (environ 20 000 fois moins qu'un gaz), la force de Bjerknes est extrêmement faible. De plus, ayant une densité et une vitesse des ondes acoustiques très proches du milieu environnant, la pression de radiation est aussi très

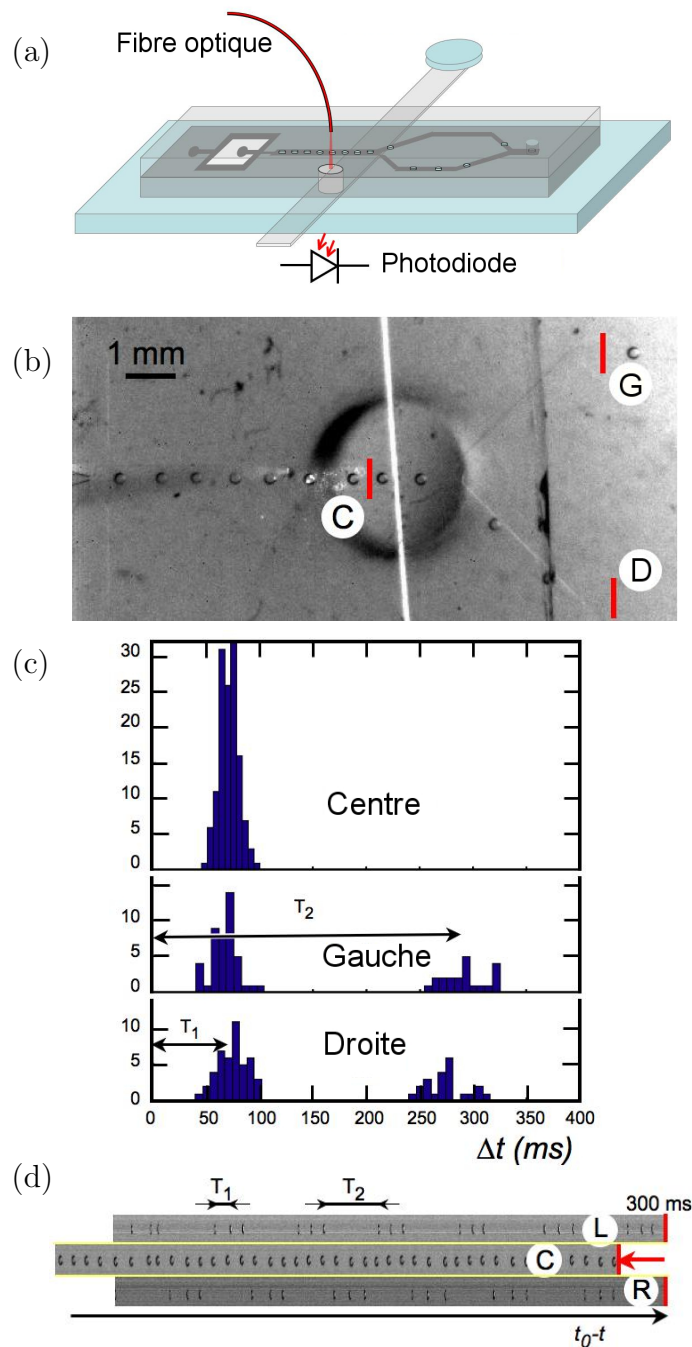


FIGURE 4.6 – Expérience d’aiguillage automatique de bulles à une bifurcation. (a) le dispositif expérimental montrant l’emplacement de la fibre optique et de la photodiode ; (b) photo en vue du dessus de l’expérience, le barreau est clairement visible ; (c) histogrammes des temps de passage entre bulles dans chaque branche C, G et D du circuit ; (d) chronogramme obtenu en juxtaposant les lignes G, C et D de chaque image du film de l’expérience.

faible. Nous avons observé dans les expériences qu’effectivement les gouttes ne sont pas déviées. Crum [58] a montré qu’il est possible de piéger des gouttes dans une onde stationnaire. Mais les amplitudes requises sont de l’ordre de plusieurs bars. Nous présentons ici une méthode pour manipuler des gouttes dans des microcanaux avec des ondes acoustiques grâce à une bulle.

Dans la section 3.1, nous avons décrit une méthode pour inclure une bulle dans une goutte. Cette bulle est sensible à la force de Bjerknes et peut être manipuler avec des ondes acoustiques. Les effets de tension de surface entre l’eau, l’huile et le gaz sont suffisamment importants pour que la double émulsion reste stable alors que l’on applique une force sur la bulle. Le résultat est donc une force acoustique sur la bulle qui permet de déplacer tout l’objet. La figure 4.7 montre la manipulation de gouttes d’huile à une bifurcation. Similaire à l’application d’aiguillage de bulle, nous pouvons décider quelle branche doit prendre la goutte en changeant la fréquence, c’est-à-dire en modifiant la direction du gradient de pression.

Sur la photo de la figure 4.7(c), certaines gouttes contiennent une bulle, d’autres pas à cause d’une génération instable des doubles émulsions. Les gouttes prennent la branche de gauche par défaut à cause de leur position décentrée dans le canal (due à la position de la marche). En appliquant une force acoustique vers la branche de droite, les doubles émulsions sont déviées vers celle-ci. Nous séparons ici les gouttes seules de celles qui contiennent une bulle. En fonction de leur taille ou de leur composition, nous pouvons “marquées” acoustiquement certaines gouttes en leur injectant une bulle et ainsi effectuer un tri sélectif.

4.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé notre étude de la force de Bjerknes pour des bulles confinées et le développement de plusieurs applications.

Nous avons d’abord présenté la théorie de la force de Bjerknes originellement pour des bulles sphériques que nous avons adaptée à des bulles cylindriques, pour se rapprocher de nos conditions expérimentales. Les deux expressions trouvées pour les cas 2D et 3D sont très similaires. La mesure expérimentale de cette force, grâce à la modélisation de la force de traînée de la bulle effectuée au chapitre précédent, nous a permis de confirmer le modèle théorique et de déterminer la nouvelle relation entre la fréquence de résonance d’une bulle et son rayon apparent. Le résultat est que nos bulles ne pulsent pas comme une sphère ni comme un cylindre, mais ont bien une forme qui se situe entre les deux. La comparaison de l’amplitude de cette force avec une pression de radiation sur une particule a montré une différence de quatre ordres de grandeur.

Nous avons ensuite développé quatre applications de cette force acoustique pour manipuler les bulles dans les microcanaux. Le tri en taille a échoué à

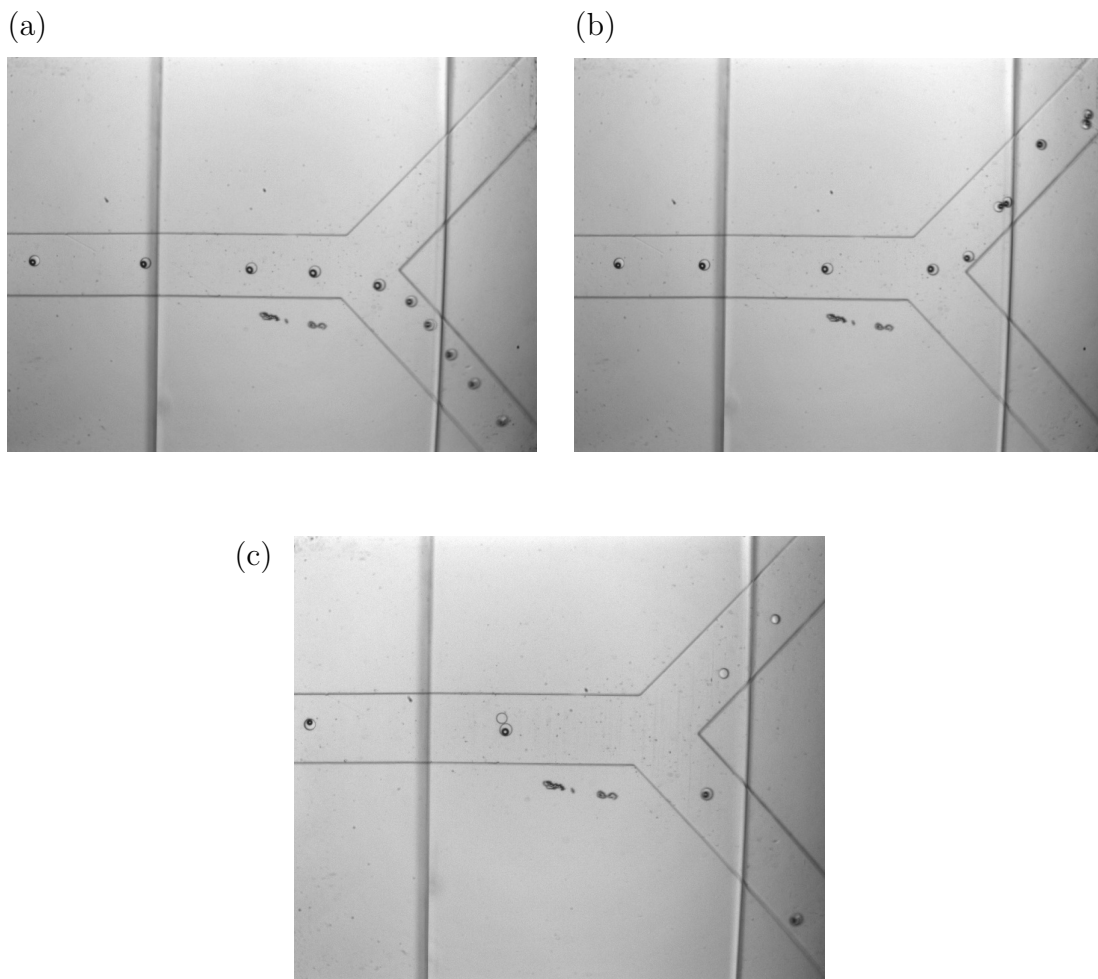


FIGURE 4.7 – Aiguillage de doubles émulsions à une bifurcation. Les fréquences acoustiques sont de (a) 58 kHz et (b) 50 kHz. Le barreau de verre bien visible a une largeur de 2,37 mm, la largeur du canal est de 50 μm . (c) Déviation dans la branche de droite de gouttes marquées par une bulle, celles non “marquées” allant à gauche par défaut.

cause de problèmes de production d'une population bidisperse de bulles bien contrôlée, et de l'interaction acoustique entre bulles qui a mené à une forte attraction. La division asymétrique de bulles a permis justement de casser à une bifurcation une bulle en deux parties de tailles différentes selon l'amplitude du champ acoustique. Lorsque l'amplitude est suffisamment importante, la bulle est complètement déviée dans une des branches de la bifurcation et nous avons alors développé l'aiguillage automatique, en agrémentant le système d'une étape de détection avec un faisceau optique. Nous avons ainsi pu aiguiller des bulles à la bifurcation de façon automatique selon une séquence prédéfinie, avec une très grande fiabilité et une très grande vitesse. La dernière application concerne la manipulation de gouttes, normalement inertes aux ultrasons. Grâce à la production de doubles émulsions, nous avons pu aiguiller des gouttes à une bifurcation.

En perspective, nous pourrions étudier plus précisément la dépendance de la force de Bjerknes avec la hauteur du canal. Il semble qu'il s'agit du paramètre pertinent pour différencier le modèle pour une bulle confinée de la théorie classique en trois dimensions. De plus, nous pourrions probablement réussir l'application du tri en taille en modifiant le système pour éloigner les bulles les unes des autres pour éviter les interactions acoustiques. Enfin, le principe de la manipulation de goutte trouverait plus d'écho si l'on pouvait manipuler des gouttes d'eau. Il faut pour cela se pencher sur les problèmes de tension de surface et trouver les bons surfactants pour fabriquer une double émulsion avec de l'eau.

L'échec du développement de l'application du tri en taille nous amène dans le chapitre suivant à nous intéresser aux interactions acoustiques que les bulles peuvent engendrer.

Chapitre 5

Microbulles : interactions acoustiques

Les bulles interagissent lorsqu'elles sont excitées par un champ acoustique. Dans ce chapitre, nous proposons d'étudier expérimentalement et théoriquement la force d'interaction acoustique qui mène à une distance d'équilibre entre bulles. Ces forces acoustiques secondaires engendrent ainsi une auto-organisation des bulles sur un réseau périodique. Plusieurs théories prévoient l'existence de cette distance sans jamais l'avoir observée. Nous comparerons leur prédictions à nos mesures. A plus haute amplitude acoustique apparaissent les modes de vibration de la surface des bulles, un mode de vibration non radial qui déforme fortement le pourtour des bulles. Nous décrivons ici nos observations de ces modes et nous testons les modèles qui les décrivent.

Nous exposons dans un premier temps les observations de ces cristaux acoustiques, et l'étude de la distance d'équilibre avec les paramètres de contrôle. Nous développons ensuite un modèle théorique, basé sur la force de Bjerknes et sur l'émission d'un champ secondaire, puis nous discutons les prédictions des théories existantes. Enfin, nous décrivons nos observations des modes de surface des bulles.

5.1 Etude du cristal acoustique

Lorsque les bulles sont suffisamment proches les unes des autres (à quelques diamètres de distance) et qu'elles vibrent avec une grande amplitude (c'est-à-dire excitées proche de leur fréquence de résonance), nous observons des interactions acoustiques très importantes. Lorsqu'une bulle est excitée par un champ acoustique, elle pulse et réémet des ondes acoustiques. Elle se comporte alors comme un émetteur secondaire vibrant à la même fréquence ω que la source primaire d'ultrasons, déphasée de φ (eq. 4.6) et se déplaçant selon l'écoulement de liquide dans le microcanal. Ce champ secondaire induit des forces sur les bulles voisines, forces qui peuvent être très importantes. Par exemple, dans l'application du tri

en taille (section 4.2.1), l'interaction acoustique implique une force d'attraction entre les bulles plus importante que la force de Bjerknes primaire et rend le tri inefficace.

La force observée dans certaines expériences montrent un potentiel complexe : attractif à longue et courte distance, répulsif à distance moyenne.

D'abord à courte portée, l'amplitude de la force d'attraction est très importante : les bulles s'attirent jusqu'à être en contact et ne se séparent qu'à l'arrêt de l'émission des ultrasons. Les bulles forment des agrégats allant de deux à une dizaine de bulles. Dans certains cas, l'attraction est tellement forte que les bulles sont déformées comme deux disques élastiques que l'on écrase l'un contre l'autre (figure 5.1(a)), malgré les effets de tension de surface très forts à cette échelle. En calculant la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle sur l'interface courbe, nous obtenons la pression de Laplace due à la tension de surface : $P_g - P_l = \sigma_{e-g}(1/R + 1/h)$. Sur l'interface plane, cette différence de pression est égale à la pression de disjonction qui tend à séparer les 2 bulles : $P_g - P_l = \Pi$. Nous obtenons alors la force de disjonction qui tend à séparer les bulles et qui contrebalance la force d'attraction acoustique, en multipliant Π par la surface de contact : $F = \Pi A_{contact} = \sigma_{e-g}(1/R + 1/h) h l_{contact}$. Avec une longueur de contact de $100 \mu\text{m}$, nous obtenons une force de 65 nN , non négligeable devant la force de Bjerknes primaire.

Ensuite, à moyenne portée, les bulles se stabilisent à une certaine distance d'équilibre où cette force acoustique secondaire s'annule. Cette distance est de l'ordre de quelques diamètres. Comme chaque bulle garde une certaine distance avec ses voisines, 3 bulles forment d'elles-mêmes un triangle, et un nombre important de bulles s'arrangent de façon spontanée sur un réseau triangulaire avec une répétition surprenante (figure 5.1(b) et (c)). Selon la largeur du canal et la distance d'équilibre, nous observons deux à trois lignes de bulles alignées sur les noeuds d'un réseau. La périodicité de ces motifs nous a amené à les qualifier de cristaux. D'une certaine manière, les bulles se cristallisent par interaction acoustique.

Les bulles sont bien la source de ce potentiel d'interaction. Les motifs sont stables et s'écoulent avec les bulles. Ils ne sont pas liés à l'onde stationnaire de la source primaire, le barreau en verre, d'autant qu'ils sont observés parfois bien avant ce dernier. De plus, les distances d'équilibre, de l'ordre de quelques centaines de micromètres, sont très petites devant l'onde stationnaire, de plusieurs millimètres. Les deux cas, les agrégats et les cristaux de bulles, existent en même temps. Des agrégats sont parfois observés aux noeuds du réseau du potentiel d'interaction (figure 5.1(d)).

De plus sur cette photo, nous observons que les bulles isolées et les agrégats gardent une distance minimale avec le bord du canal qui est égale à la moitié de la distance entre bulles (ou agrégats). Nous interprétons cette observation par le

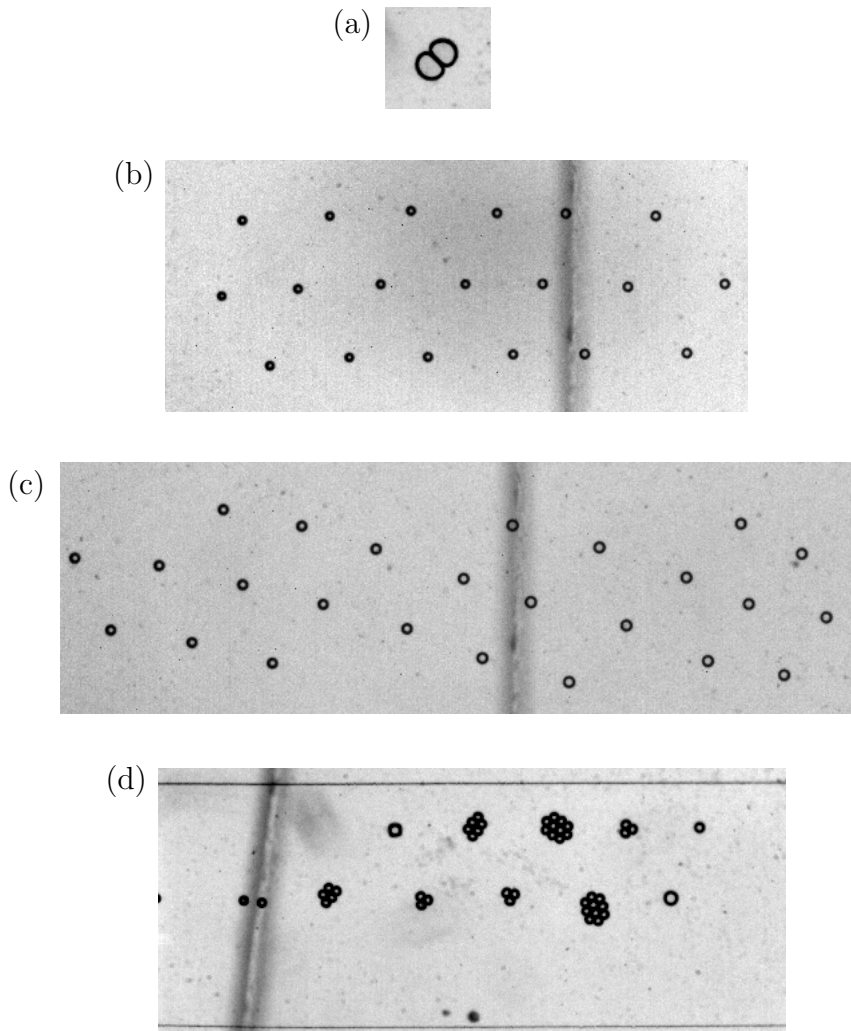


FIGURE 5.1 – Photos de bulles subissant des interactions acoustiques. (a) Deux bulles de $50\ \mu\text{m}$ de rayon s'attirant mutuellement et très fortement au point d'être déformées. (b) et (c) motifs périodiques de bulles d'environ $25\ \mu\text{m}$ de rayon s'auto-arrangeant sur un réseau triangulaire. (d) des bulles forment des agrégats aux noeuds du réseau périodique. De plus, elles s'équilibrent à une distance minimale avec le bord du canal, en haut de l'image, égale à la moitié de la distance entre bulles. Le trait vertical sur chaque photo est le premier bord du barreau en verre, l'entrée dans la zone de champ acoustique.

fait que les bulles interagissent avec leur propre image par rapport au mur. Elles s'équilibrent à la même distance avec leur image qu'avec n'importe quelle bulle, et la distance au mur est donc de moitié.

La dépendance de cette distance d'équilibre avec les paramètres de l'expérience est étudiée. Nous explorons sa variation en fonction de la taille des bulles, l'amplitude et la fréquence de l'onde acoustique. La figure 5.2 montre les résultats des mesures.

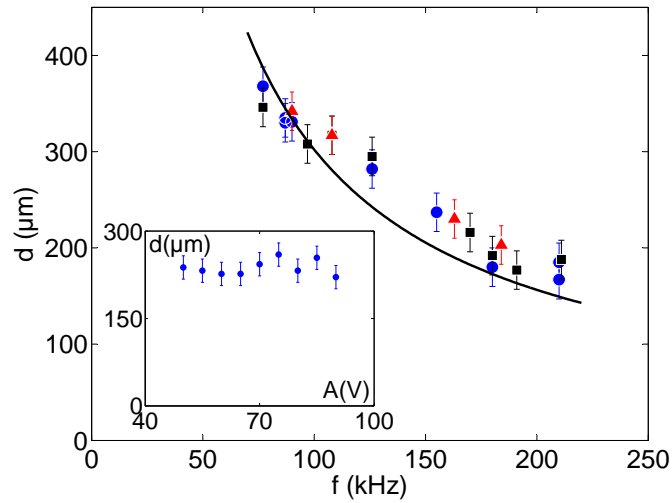


FIGURE 5.2 – Dépendance de la distance d'équilibre entre les bulles avec la fréquence de l'onde acoustique, en fonction de différentes gammes de rayon ; symboles : (o) $R=20-30 \mu\text{m}$, (\square) $R=30-40 \mu\text{m}$, (\triangle) $R=40-50 \mu\text{m}$; courbe : équation (5.1). En insert, la dépendance avec l'amplitude du signal électrique envoyé au piezo avec $R=25 \mu\text{m}$ et $f=155 \text{ kHz}$.

Nous remarquons que la distance d'équilibre ne dépend pas du rayon des bulles et de l'amplitude de l'onde acoustique. Le seul paramètre pertinent est la fréquence. Elle varie selon la relation :

$$d = af^p \quad (5.1)$$

avec $a = 30 \text{ m/s}$ et $p = -1$. La distance d'équilibre varie ainsi comme la longueur d'onde des ultrasons dans l'eau divisée par 50 : $\lambda/d \simeq 50$, et ce quelles que soient la taille des bulles et l'amplitude de l'onde acoustique. Il est à noter aussi que cet auto-arrangement existe que les bulles soient excitées avec une fréquence plus petite ou plus grande que leur fréquence de résonance.

De plus, nous mesurons cette force secondaire qui s'exerce sur les bulles grâce à l'équation 3.8 de friction sur les parois du canal établie dans la section 3.2. Les résultats sont présentés dans la figure 5.5. Les mesures sont difficiles à effectuer car il faut prendre en compte toutes les forces qui s'appliquent sur la bulle considérée : la force de Bjerknes primaire, la force d'interaction avec leur image par rapport au mur, et avec leur voisine. Ces forces ont été estimées dans des cas précis, lorsqu'une seule force à la fois est mise en jeu, mais ceci amène une forte incertitude sur les mesures. Faible à longue portée, l'interaction passe par un maximum, avant de s'annuler puis de changer de signe et de devenir répulsive. Elle redevient attractive à courte portée.

5.2 Force de Bjerknes secondaire par onde de surface

Nous établissons ici un modèle qui décrit ces observations. Le raisonnement est décrit par le schéma de la figure 5.3. Une bulle excitée par le champ acoustique incident P_1 pulse et subit la force de Bjerknes primaire. Mais elle est aussi sujette à une force de Bjerknes secondaire à cause des bulles voisines. Cette force d'interaction provient du fait que les bulles oscillent, excitées par le champ primaire P_1 , et réémettent des ondes acoustiques secondaires P_2 . Elles se comportent alors comme des émetteur locaux d'ultrasons. La force de Bjerknes secondaire subie par une bulle est donc causée par la vibration de son volume et par la variation du champ acoustique secondaire P_2 généré par les bulles voisines.

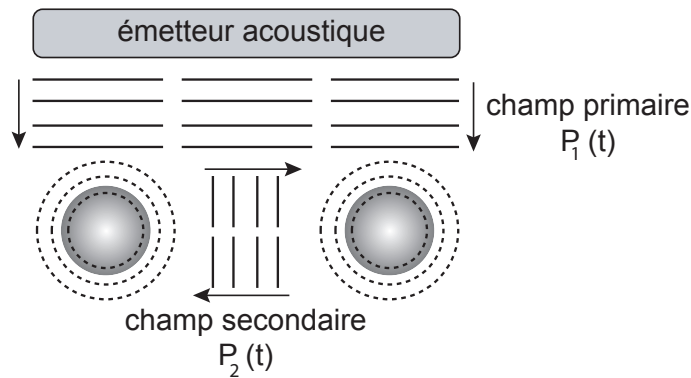


FIGURE 5.3 – Schéma du principe d'interaction entre deux bulles excitées par un champ acoustique incident.

Les valeurs des distances d'équilibre nous amène à considérer non pas des ondes acoustiques en volume, dont la longueur d'onde est de l'ordre de plusieurs millimètres à 100 kHz, mais plutôt des ondes de surface qui se propagent sur les

parois souples haut et bas des microcanaux. La figure 5.4 schématise le principe d'émission et de propagation de ces ondes appelées ondes de Rayleigh.

Le volume varie à la fréquence d'excitation ω avec un déphasage φ avec la source primaire, autour d'un volume d'équilibre V_0 et avec une amplitude ε . L'amplitude de son oscillation est uniquement déterminée par le champ acoustique primaire P_1 , celle du champ secondaire P_2 étant supposée faible. Pour alléger les expressions, nous ne prenons pas en compte le gradient du champ primaire. La variation du volume est considérée spatialement constante.

Le champ de pression secondaire se propage avec la même fréquence ω et le même déphasage φ . Nous envisageons un nombre d'onde k_2 avec une vitesse de propagation à déterminer, et avec une dilution géométrique de l'amplitude en \sqrt{r} due à la propagation sur une surface. Le volume et la pression varient donc selon :

$$V(t) = V_0 [1 - \varepsilon \cos(\omega t + \varphi)] \quad (5.2)$$

$$P_2(r, t) = P_{2,0} \sqrt{\frac{R}{r}} \cos(\omega t + \varphi - k_2 r) \quad (5.3)$$

Nous exprimons la force d'interaction sous la forme d'un potentiel Φ en considérant le gradient du champ de pression secondaire comme la dérivée avec la variable d'espace r , dérivée d'espace qui sort de la moyenne temporelle :

$$F_{B2} = \langle -V(t) \nabla P_2(r, t) \rangle = -\frac{\partial}{\partial r} \langle V(t) P_2(r, t) \rangle = -\frac{\partial \Phi}{\partial r}$$

Nous avons donc : $\Phi = \langle V(t) P_2(r, t) \rangle$, qu'il suffit de dériver pour obtenir la force de Bjerknes secondaire :

$$\Phi = -\frac{V_0 P_{2,0} \varepsilon}{2} \sqrt{\frac{R}{r}} \cos(k_2 r) \quad (5.4)$$

$$F_{B2} = -\frac{V_0 P_{2,0} \varepsilon}{2} \sqrt{R} \left(\frac{k_2 \sin(k_2 r)}{\sqrt{r}} + \frac{\cos(k_2 r)}{2 r^{3/2}} \right) \quad (5.5)$$

Le potentiel et la force sont tracés dans la figure 5.5 en fonction de $r/\lambda_2 = k_2 r/2\pi$.

Nous remarquons un minimum absolu du potentiel vers $r = 0$. Ceci explique la très forte attraction au voisinage immédiat des bulles, ce qui amène aux agrégats. Nous avons ensuite un minimum local à une longueur d'onde de distance. Les bulles peuvent se trouver piégées dans ce puits de potentiel. Nous expliquons ainsi la distance d'équilibre observée. Il existe ensuite un minimum à chaque multiple de la longueur d'onde, mais la profondeur des puits diminuent.

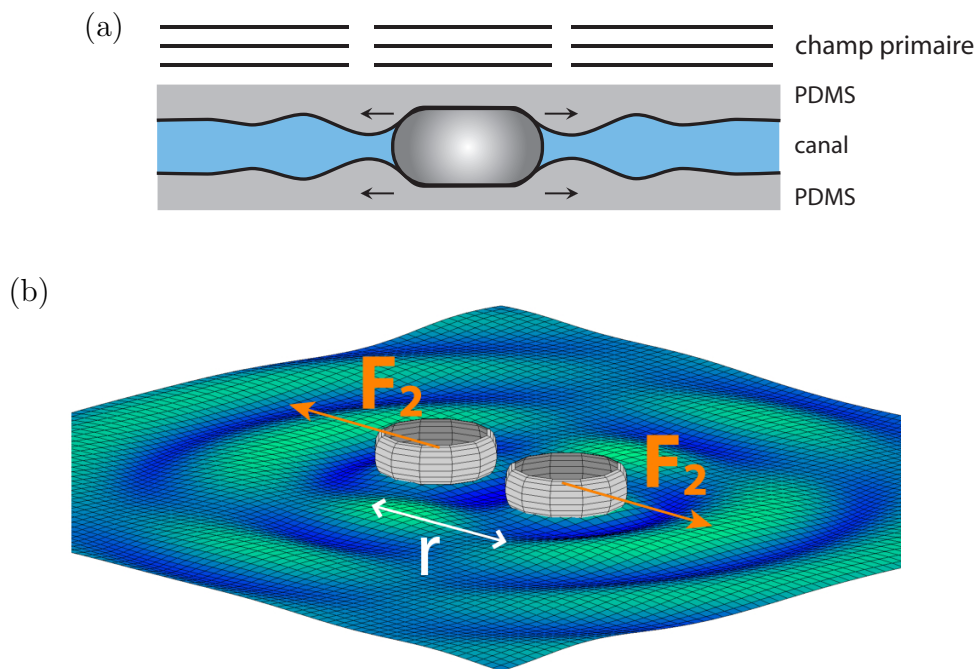


FIGURE 5.4 – (a) Schéma en vue de côté d’une bulle confinée dans le canal. Elle pulse, excitée par le champ primaire, et réémet des ondes de pression se propageant sur les parois du canal. (b) Simulation de la propagation et des interférences de ces ondes de Rayleigh émises par deux bulles.

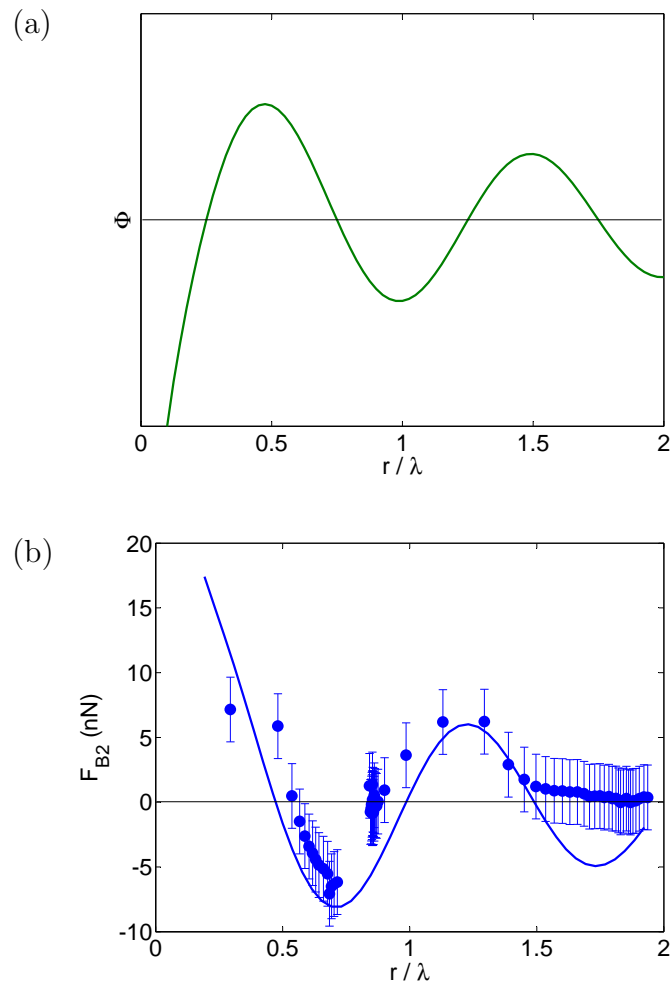


FIGURE 5.5 – (a) Potentiel Φ (équation (5.4)) en fonction de r/λ_2 . (b) Force de Bjerknes secondaire; courbe : équation (5.5), points : mesures à partir de la trajectoire d'une bulle avec $R=25 \mu\text{m}$, $f=155 \text{ kHz}$ et une distance d'équilibre de $260 \mu\text{m}$.

Dans la figure 5.5(b), λ_2 est un paramètre qui a été ajusté à $260 \mu\text{m}$ pour une fréquence de 155 kHz . La longueur des ondes de Rayleigh pour le PDMS correspond bien à cette distance. En effet, comme expliqué dans l'annexe B, la vitesse de ces ondes à la surface du PDMS est très faible, ce qui donne des longueurs d'onde extrêmement réduites. En posant $d = \lambda_2$, la relation (5.1) nous donne directement la vitesse de ces ondes : $d = \lambda_2 = c_2/f$ avec $c_2 = 30 \text{ m/s} = c_{\text{Rayleigh,PDMS}}$.

Le modèle prédit donc un minimum du potentiel, calculé à partir de la force de Bjerknes secondaire, à une longueur d'onde de distance. Cette longueur d'onde, qui correspond à la distance d'équilibre entre bulle, est celle des ondes de Rayleigh se propageant sur les parois en PDMS du microcanal. Le champ acoustique secondaire, responsable de l'auto-arrangement des bulles sur un motif périodique, n'est donc pas des ondes de compression dans l'eau, mais des ondes de surface.

5.3 Discussion

Le modèle prévoit l'existence d'un minimum local du potentiel à chaque multiple de la longueur d'onde. Mais nous n'observons pas de stabilisation des bulles à de grandes distances, à plus de $0,5 \text{ mm}$, même dans des canaux avec une largeur importante (allant jusqu'à 3 mm). Les mesures de la figure 5.5(b) montrent que cette force secondaire devient très faible au-delà de $1,5 \lambda$. Le puits de potentiel peut alors ne pas être suffisant pour piéger une bulle. L'atténuation des ondes de Rayleigh à la surface du PDMS n'est pas prise en compte dans le modèle. Cette dernière diminuerait l'amplitude de façon plus importante avec la distance et décrirait peut-être de mieux les observations. Nous supposons cependant que plusieurs de ces minima s'ajoutent lorsque les bulles commencent à s'auto-arranger et participent à l'apparition et à la stabilisation des motifs périodiques. Ceci peut aussi expliquer l'existence de ces cristaux parfois observés en amont de la zone du champ acoustique primaire.

Nous supposons qu'une onde acoustique qui se propage sur les parois du canal ajoute une pression à celle de l'eau dans le canal selon le principe des appareils à SAW ou *Surface Acoustic Wave*. Ils sont détaillés dans le chapitre 6. Comme la différence d'impédance acoustique entre le PDMS et l'eau est faible, il y a un bon coefficient de transmission, comme expliqué dans la section 2.2.3. L'onde à la surface du PDMS est transmise à l'eau tout au long de sa propagation. Au contraire, lorsque l'onde arrive sur une bulle, la différence d'impédance acoustique est considérable. L'onde n'est pas transmise et continue de se propager sur la surface. C'est pourquoi nous posons que l'onde de pression $P_2(r, t)$ dans l'eau est celle de l'onde de Rayleigh.

Le modèle a été établi pour décrire une auto-organisation de bulles simples excitées proche de leur fréquence de résonance. Il a cependant été observé d'autres phénomènes que le modèle ne peut pas décrire, comme les chaînes ou les colliers de bulles, et des distances d'équilibre extrêmement faibles d'environ 1,1 fois le diamètre des bulles (figure 5.6(a) et (b)). De plus, il a été vu parfois deux bulles coalescer et n'en former plus qu'une malgré les surfactants qui empêchent cela (figure 5.6(c) et (d)).

Théories existantes de l'auto-organisation de bulles

Plusieurs études théoriques prévoient l'existence d'une distance d'équilibre entre deux bulles excitées par un champ acoustique. Il y a en premier lieu Leighton ([7] p.364-365) qui calcule la pression résultante de l'interférence entre le champ acoustique primaire et le champ secondaire émis par une bulle. Il prédit alors une distance d'équilibre valable uniquement pour deux bulles de part et d'autre de la résonance. Barbat *et al.* [8] effectue une étude très proche de celle de Leighton en plaçant les bulles très proches de la résonance et prenant en compte des ordres supérieurs des forces acoustiques. Dans son modèle et ses expériences, il n'obtient pas de position stable pour deux bulles identiques, mais avec deux bulles différentes dont une est très proche de la résonance. Enfin, Doinikov [9] établit son modèle en considérant la multiple diffusion d'une onde acoustique plane sur deux bulles. Il trouve une position d'équilibre entre deux bulles de même taille de l'ordre de 0,5 fois la longueur d'onde.

Si chacun de ces modèles prévoient une distance d'équilibre, sans jamais l'avoir observé, la dépendance avec la taille des bulles ou l'amplitude acoustique ne correspond pas avec nos observations. En considérant des ondes en volume, la dilution géométrique est en $1/r$, au lieu de $1/\sqrt{r}$ sur une surface. De plus, les longueurs d'onde sont bien plus importantes et amènent des puits de potentiel beaucoup moins prononcés car plus larges. Nous pensons donc en conclusion qu'il est bien plus difficile d'obtenir des auto-arrangements de bulles en 3D par rapport à un milieu confiné. C'est pour ces raisons que nous pouvons observer pour la première fois ces cristaux de bulles générés par des ondes acoustiques.

Les résultats de l'étude menée dans le groupe de Couder [59] ressemblent de façon surprenante à ceux décrits ici. Leur expérience consiste à faire rebondir des gouttes sur une surface liquide qui vibre verticalement. L'accélération de cette surface n'est pas suffisante pour induire des instabilités de Faraday, la surface n'est pas perturbée et reste totalement plane. Mais cette accélération est suffisamment importante pour piéger un film d'air entre les gouttes et le liquide du réservoir, ce qui empêche la coalescence de ces gouttes. Elles ont alors une durée de vie suffisante pour les faire interagir. En effet, lorsqu'une goutte rebondit à plusieurs reprises sur le liquide, l'étude montre qu'elle émet des ondes, de petites vagues qui se propagent sur la surface du liquide (figure 5.7(c)). Elle se comporte

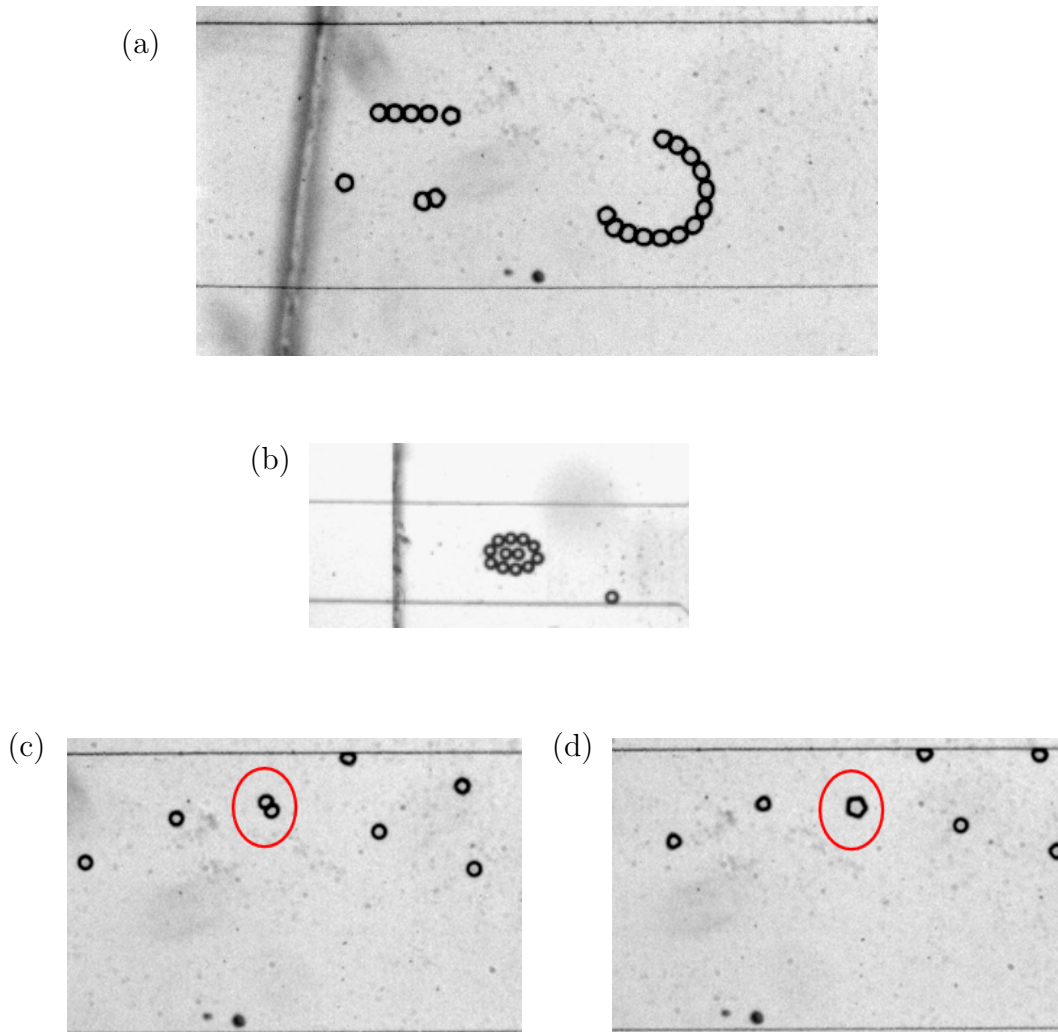


FIGURE 5.6 – (a) et (b) structures d'auto-organisation de bulles sous champ acoustique. On observe une chaîne de 13 bulles, un collier de 10 bulles, et des distances d'équilibre entre bulles très réduites. (c) et (d) coalescence de 2 bulles malgré les surfactants qui stabilisent les interfaces. La largeur des canaux est de 1 mm pour (a), (c) et (d), de 0,5 mm pour (b).

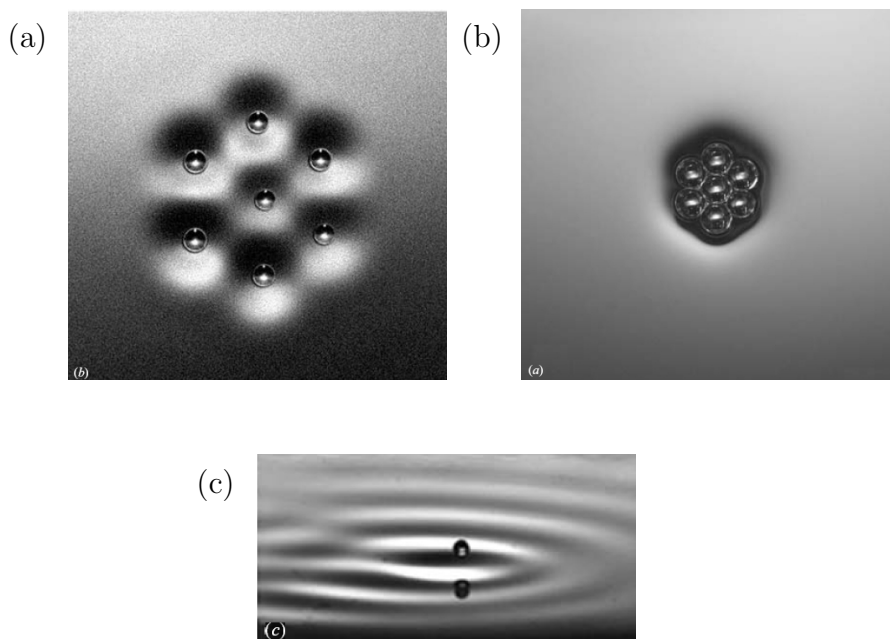


FIGURE 5.7 – Expérience de Protière *et al.* [59] de gouttes rebondissantes sur une surface liquide plane. Les auteurs de l'étude retrouvent (a) les agrégats et (b) le réseau triangulaire. (c) Les vagues émises par une goutte en vue de côté.

alors comme un émetteur local. Les auteurs montrent que deux gouttes qui rebondissent peuvent interagir, s'attirer ou se stabiliser à une certaine distance. Ils retrouvent alors les agrégats et le réseau triangulaire avec une distance entre goutte de l'ordre de la longueur d'une onde de surface (figures 5.7(a) et (b)).

Nous retrouvons ici le même principe d'interaction et d'auto-organisation d'objets qui sont les propres émetteurs du champ d'interaction dont le milieu de propagation est une surface. Il est étonnant d'obtenir les mêmes observations avec des différences de principes physiques fortes : l'utilisation de la gravité comme force primaire et la propagation des ondes secondaires sur une surface d'un liquide au lieu de celle d'un solide. Cependant, l'existence d'un seuil critique dans les expériences de Protière *et al.* pour générer ces auto-organisations diffère fortement avec nos observations où un seuil net en amplitude n'a pas été clairement observé.

5.4 Modes de vibration de la surface des bulles

Lorsque l'amplitude acoustique dépasse un certain seuil, nous excitions un mode de vibration non radial des bulles. Quand leur volume pulse de façon trop importante, une instabilité paramétrique vient déformer leur surface. Nous observons

alors des pics et des creux qui viennent décorer le pourtour des bulles. Ce mode a parfois été observé lors des expériences sur les cristaux de bulle précédemment décrites.

Une expérience en particulier a permis d'effectuer des mesures sur ces modes de surface. Les photos sont présentées dans la figure 5.8. Dans cette expérience, la fréquence et la tension d'excitation envoyées au piezo sont fixées à $f = 126$ kHz et $A = 70$ V. Le seul paramètre variable est la taille des bulles. Nous observons en premier lieu que les bulles s'auto-arrangent sur le réseau triangulaire précédemment étudié. Des agrégats peuvent aussi être vus. Deuxièmement, nous voyons que les bulles sont décorées de pics sur leur surface. Ces pics mesurent environ une dizaine de micromètres pour des bulles de $30 \mu\text{m}$ de rayon. C'est une déformation très importante et facilement observable au microscope. Ce sont des dimensions identiques à l'étude de Versluis *et al.* [60] pour des bulles sphériques (nos bulles ici sont confinées). Le nombre de pic n varie avec la taille de la bulle : plus elle est petite, moins il y en a. Une étude quantitative a été menée en comptant le nombre de pic en fonction du rayon de la bulle. Le résultat se trouve sur la figure 5.9.

Ce phénomène est déjà connu depuis un certain temps. Il a notamment été décrit par Lamb [4] en 1932 et continue d'être étudié [61]. Ces modes de vibration apparaissent pour des amplitudes de pression au-delà d'un certain seuil, et lorsque la fréquence d'excitation est égale au double de la fréquence du mode : $\omega = 2\omega_n$, due à la nature paramétrique de l'excitation. Le seuil est plus aisément atteint si l'amplitude d'oscillation du volume de la bulle est important, c'est-à-dire proche de la fréquence de résonance. Lamb donne la relation entre le rayon d'une bulle sphérique avec le numéro du mode excité :

$$R^3 = (n-1)(n+1)(n+2) \frac{\sigma}{\rho\omega_n^2} \quad (5.6)$$

$\omega_n = 2\pi f/2$ étant une constante dans l'expérience, nous traçons R en fonction de n . La figure 5.9 montre que cette prédiction théorique correspond bien aux données expérimentales, sans avoir besoin de la modifier pour prendre en compte l'effet du confinement. Dans le livre de Chandrasekhar [62] se trouve cette relation entre la fréquence des modes de surface et le rayon d'un cylindre creux infiniment long :

$$R^3 = n(n-1)(n+1) \frac{\sigma}{\rho\omega_n^2} \quad (5.7)$$

Le rapport entre les deux relations varie selon n entre 1,2 et 2, ce qui mène à moins de 25% d'écart sur le rayon prédit.

Comme expliqué dans [60], chaque mode existe pour n'importe quel rayon. Il existe cependant un rayon optimal pour lequel le seuil de pression d'un mode

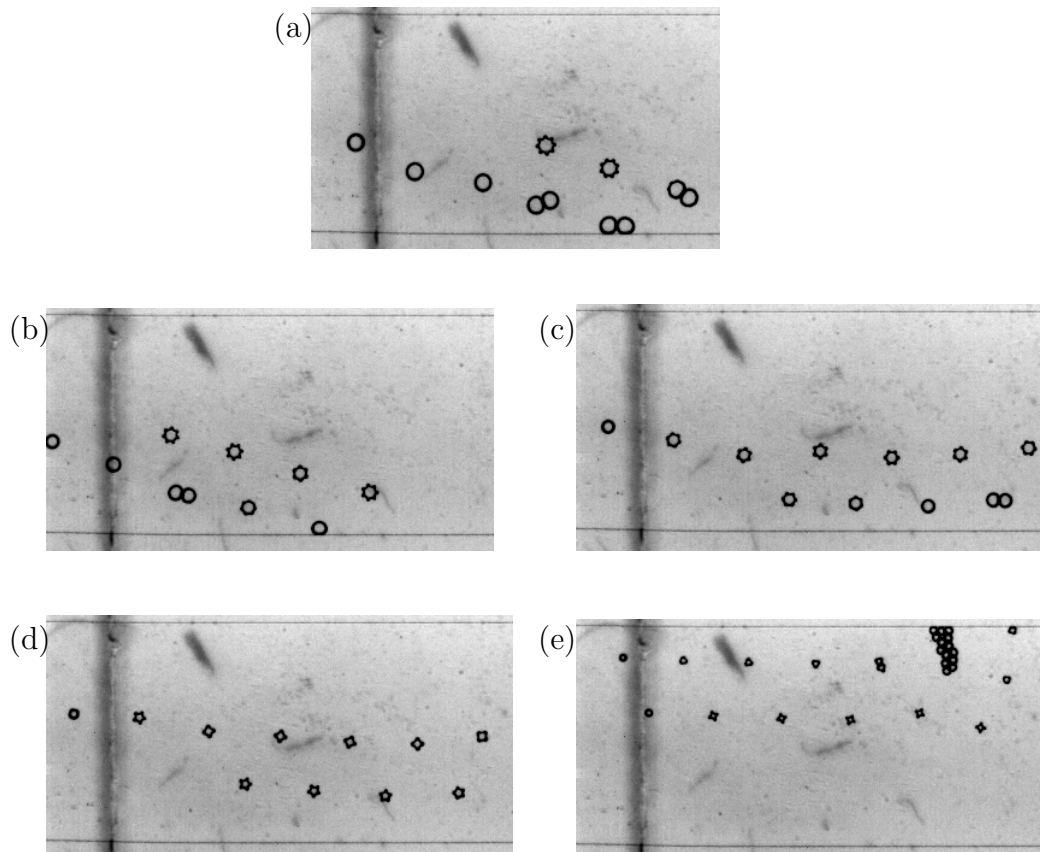


FIGURE 5.8 – Photos des modes de surface. Seule la taille des bulles change : (a) $R_8=44 \mu\text{m}$, (b) $R_7=39 \mu\text{m}$, (c) $R_6=36 \mu\text{m}$, (d) $R_5=30 \mu\text{m}$ et $R_4=29 \mu\text{m}$, (e) $R_4=22 \mu\text{m}$ et $R_3=20 \mu\text{m}$. La fréquence est fixe à $f=126 \text{ kHz}$ et l'amplitude $A=70 \text{ V}$.

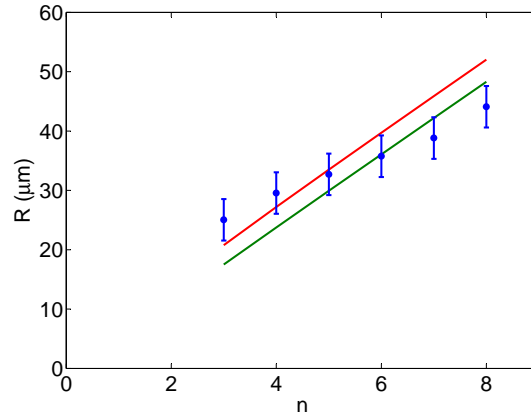


FIGURE 5.9 – Rayon R des bulles en fonction du nombre de pics n . Les points sont les mesures expérimentales, la droite rouge est l'équation (5.6) et la droite verte l'équation (5.7). La hauteur du canal est de $h=25 \mu\text{m}$.

donné est minimal. Avec un rayon légèrement différent, il y a toujours un mode privilégié jusqu'à un certain point où 2 modes sont possibles. Les photos de la figure 5.8 montrent par exemple que les modes 4 et 5 d'une part, et 3 et 4 d'autre part coexistent pour des rayons de bulles presque identiques.

Le fait que ces modes de surface ont été observés préférentiellement lors de l'existence des cristaux nous amène à penser que le champ acoustique secondaire amplifie l'oscillation des bulles. Celui-ci vient se rajouter au champ primaire et le seuil de pression est alors plus facilement atteint. Les modes de surface surviennent alors plus facilement.

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé notre étude sur les forces acoustiques secondaires et nos observations des modes de surface.

Si les interactions acoustiques entre bulles peuvent induire une forte attraction, nous avons aussi observé une distance d'équilibre entre les bulles. Lorsque cette distance d'équilibre se répète, les bulles s'auto-arrangent sur un motif triangulaire périodique. Cela nous a amené à les qualifier de cristaux acoustiques. De plus, les bulles interagissent avec leur propre image à travers les murs des canaux, gardant ainsi avec le mur la moitié de la distance entre bulles. Nous avons établi que cette distance d'équilibre dépend directement de la longueur d'onde, et pas de l'amplitude acoustique ou de la taille des bulles.

Le modèle que nous avons conçu se base sur la force de Bjerknes et sur l'émission d'ondes acoustiques de surface sur les parois des microcanaux par les bulles pulsantes. Ce modèle décrit correctement nos observations, contrairement

aux théories existantes qui ne montraient pas la bonne dépendance avec les paramètres. Seul le modèle de Doinikov se rapproche de nos mesures. La nature de ces ondes est probablement ce qui nous a permis de voir cet auto-arrangement. Nous comprenons ainsi pourquoi il n'a jamais été observé auparavant avec des bulles libres.

Nous avons excité les bulles à plus haute amplitude acoustique pour faire apparaître les modes de surface. Les modes de 3 à 8 ont été observés et correctement décrit par les modèles existants, aussi bien de bulles sphériques que cylindriques.

Nous pourrions étudier l'influence des propriétés mécaniques du PDMS sur cette distance d'équilibre. Simplement en changeant la quantité de réticulant, il est possible de modifier le module d'Young du PDMS et donc la vitesse des ondes de surface (voir annexe B). Ceci aurait un impact direct sur la distance d'équilibre entre bulle et serait une preuve de plus de la nature du champ acoustique secondaire. De plus, il faudrait raffiner le modèle pour pouvoir décrire les colliers de bulles ou les chaînes, ainsi que les distances très courtes que nous avons observés. Enfin, la compréhension et la maîtrise du phénomène de coalescence de deux bulles permettrait de développer de nouvelles applications des forces acoustiques, pour par exemple mélanger deux gaz contenus dans deux bulles différentes. Il faut probablement regarder le mécanisme de rupture de films de savon excités par champ acoustique [63].

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

6.1 Conclusions

Dans cette thèse expérimentale, nous avons étudié l'écoulement de bulle en microcanal, leur manipulation et leur interaction acoustique.

Dans le chapitre 2, nous avons décrit la lithographie douce, la méthode utilisée pour fabriquer les microcanaux, avec les différentes étapes : fabrication du moule et utilisation du PDMS. Nous avons exposé ici une adaptation de cette technique pour produire des moules multicouches, ce qui a permis d'obtenir des canaux de différentes hauteurs. Nous avons ensuite présenté le dispositif expérimental : d'abord la géométrie générale des microcanaux pour produire des bulles et des doubles émulsions, puis l'expérience sous gravité, et sous champ acoustique (avec l'étude du barreau en verre résonant, qui joue le rôle d'un guide d'onde, ainsi que son intégration dans le dispositif microfluidique), les paramètres de contrôle, et enfin les techniques de visualisation et de mesure.

Nous avons d'abord traité dans le chapitre 3 la génération des doubles émulsions, puis de l'écoulement des bulles dans les microcanaux. Nous avons établi un modèle pour la force de traînée des bulles, puis nous l'avons vérifié et calibré en appliquant sur les bulles la force d'Archimède. La génération des microbulles avait déjà été étudiée dans l'étude précédente, et l'étude de la traînée des doubles émulsions n'était pas nécessaire dans un premier temps. Une relation a été trouvée décrivant la génération des doubles émulsions en fonction des paramètres de contrôle, sans pour l'instant avoir de raisonnement pour l'expliquer. Le modèle établi pour la force de traînée s'est révélé être correct puisqu'il a été vérifié par les expériences.

Nous avons étudié dans le chapitre 4 la force acoustique appliquée sur les bulles. Les caractéristiques mesurées montrent qu'il s'agit de la force de Bjerknes, lorsque la résonance de la bulle est excitée. Nous avons développé dans un premier temps le modèle théorique de cette force pour des bulles cylindriques et sphériques, basé sur la variation du volume de la bulle et du gradient de pression,

puis nous avons montré les mesures de la force acoustique que nous avons faites grâce à la force de friction précédemment étudiée. Le modèle reproduit fidèlement les caractéristiques de la force acoustique mesurée lors des expériences. Nous avons développé par la suite des applications de cette force sur les microbulles : le tri en taille qui n'a pas abouti à cause des forces acoustiques secondaires, la division asymétrique contrôlée, qui permet de casser une bulle en deux parties de taille distincte, l'aiguillage automatique, pour guider les bulles à une bifurcation de façon automatisée grâce à un étage de détection optique, et enfin la manipulation acoustique de goutte d'huile grâce à la génération de doubles émulsions.

Dans le chapitre 5, nous avons décrit les interactions acoustiques entre les bulles que nous avons observées dans les expériences. Cette interaction acoustique mène à une auto-organisation des bulles sur un motif régulier de forme triangulaire. Ceci nous a amené à les qualifier de cristal généré par interaction acoustique. Ici, la taille de la maille dépend uniquement de la fréquence. Aucun des modèles qui prévoient l'existence de ces cristaux, mais sans jamais les observer, ne décrivent correctement nos observations. Celui que nous avons conçu et qui est en accord avec nos mesures, montre que la maille est égale à une longueur d'onde de Rayleigh, onde générée par les bulles qui se comportent comme des émetteurs secondaires, et qui se propage sur les parois en PDMS des canaux. Ceci explique la très faible distance d'équilibre entre les bulles. Il est à noter que c'est la première observation d'une auto-organisation de bulles excitées par un champ acoustique. Enfin, le champ secondaire émis par les bulles a participé à l'apparition des modes de surface, un mode de vibration non radial des bulles qui arrivent au-delà d'un seuil de pression. Ce phénomène est déjà connu et la théorie existante est en accord avec nos mesures.

6.2 Perspectives

Un certain nombre de pistes sont envisageables pour la poursuite de l'étude.

Le cristal acoustique en cristal phononique

Il serait intéressant de pouvoir arrêter les cristaux de bulles pour pouvoir les manipuler. En effet, ce genre d'arrangement entre les bulles peut permettre de fabriquer un méta-matériau phononique. Ces matériaux, étudiés notamment par Leroy *et al.* [64], sont des structures périodiques de composants élastiques distincts. Selon la distance entre chaque composant, certaines longueurs d'onde acoustique sont grandement atténuées lorsqu'elles les traversent, tout comme un potentiel périodique dans un matériau semi-conducteur perturbant le passage des électrons. Nous retrouvons alors la notion de bande interdite. Avec les interactions acoustiques entre les bulles menant à une auto-organisation en un réseau triangulaire, nous pourrions fabriquer un méta-matériau phononique paramétrable car la

distance entre les bulles, la maille du cristal, dépend de la fréquence d'excitation. En modifiant la fréquence et donc la maille, nous serions en mesure de choisir quelle bande de fréquence bloquer.

Le problème ici est que les bulles ne font que passer dans le canal. Les quelques essais menés pour les stopper ont montré que leur arrangement périodique est fragile, il est rapidement détruit par la force de Bjerknes primaire et par l'écoulement de liquide. Ces motifs périodiques formés par les bulles ont peut-être les propriétés de matériau phononique alors qu'ils s'écoulent. Si ce n'est pas le cas, il faut alors modifier le canal pour arrêter les bulles et les manipuler alors qu'elles sont immobiles.

D'autres doubles émulsions

L'application de manipulation de goutte a été appliquée à des gouttes d'huile dans de l'eau. Il serait aussi très intéressant de manipuler des gouttes d'eau dans de l'huile. En effet, il y a beaucoup d'intérêt à travailler en milieu aqueux, par exemple pour effectuer un certain nombre de réactions biochimiques. En choisissant correctement les liquides, et notamment l'huile, il doit être possible de fabriquer des doubles émulsions avec du gaz et de l'eau dans de l'huile. Nous pourrions alors répéter l'expérience pour manipuler cette fois des gouttes d'eau qui serviront de petits réacteurs aqueux.

Les SAW pour une manipulation individuelle

Il est prévu d'utiliser un appareil SAW, pour *Surface Acoustic Wave*, pour manipuler les bulles individuellement. Le principe des SAW est schématisé sur la figure 6.1 pour manipuler une goutte d'eau à l'air libre [65, 66]. Une onde de surface est créée et se propage sur un matériau piézoélectrique (LiNbO_3 ou le Lithium Niobate par exemple) grâce à des électrodes interdigitées fabriquées par des techniques de microfabrication. Cette onde exerce des forces acoustiques sur les objets qui se trouvent sur la surface. En collant un circuit microfluidique sur ce matériau, nous aurions alors la possibilité de manipuler des objets dans les microcanaux. Ceci a déjà été réalisé pour manipuler des gouttes [67] et des particules [68] dans un microcanal. Mais cela n'a jamais été testé pour pousser des bulles de gaz. Des études poussées sont nécessaire pour expliquer les principes physiques mis en jeu, notamment celle de Brunet *et al.* [66]. Nous ne savons pas si le principe fonctionne sur les bulles et il serait intéressant de l'étudier.

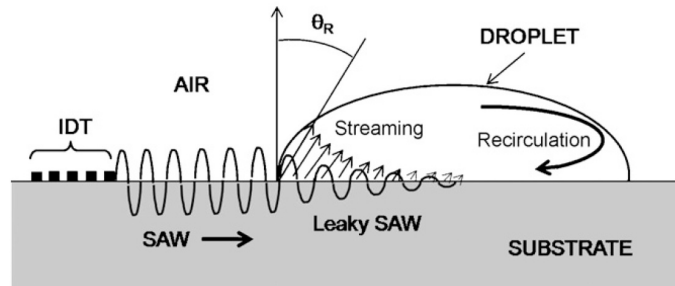


FIGURE 6.1 – Schéma du principe d'un appareil SAW [65]. Les électrodes interdigitées IDT émettent l'onde SAW qui se propage vers la droite sur la surface du substrat et rencontre la goutte. Le coefficient de transmission n'est alors plus négligeable, l'onde s'atténue en transférant de la quantité de mouvement au liquide. Le résultat est une force acoustique qui déplace la goutte.

Annexe A

Etapes de fabrication d'un moule multicouche

Le processus pour fabriquer un moule en résine comporte 5 étapes. Il est grandement complexifié lorsque plusieurs couches sont nécessaires. Plusieurs essais ont permis de développer un protocole optimal qui est décrit ici en prenant comme exemple une première couche de $6\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, puis 3 couches de $8\ \mu\text{m}$. L'étape la plus critique est l'alignement du masque avec le motif exposé et développé des couches inférieures. Il faut aussi bien penser que l'épaisseur de résine à étaler n'est pas la même que celle à exposer aux rayons UV. La dernière colonne du tableau donne à titre indicatif le temps nécessaire pour effectuer l'opération. Il faut compter une demi-journée par couche, et donc 2 jours entiers pour un moule multi-couches avec ces épaisseurs.

94ANNEXE A. ETAPES DE FABRICATION D'UN MOULE MULTICOUCHE





	Opération	Quantité	Temps
	sécher la plaque	250°C	5'
1ère couche 	étalement 6 μm 1ère cuisson 6 μm exposition 6 μm 2ème cuisson 6 μm développement	4100rpm 40'' 65°C 5' 95°C 5' 200mJ 40'' 65°C 5' 95°C 15'	5' 2h 5' 2h 10'
2ème couche 	étalement 14 μm 1ère cuisson 14 μm exposition 8 μm 2ème cuisson 14 μm développement	1900rpm 40'' 65°C 10' 95°C 35' alignement 300mJ 60'' 65°C 10' 95°C 30'	5' 2h30 15' 2h30 10'
3ème couche 	étalement 22 μm 1ère cuisson 22 μm exposition 8 μm 2ème cuisson 22 μm développement	1200rpm 40'' 65°C 10' 95°C 35' alignement 300mJ 60'' 65°C 10' 95°C 30'	5' 2h30 15' 2h30 10'
4ème couche 	étalement 30 μm 1ère cuisson 30 μm exposition 8 μm 2ème cuisson 30 μm développement	900rpm 40'' 65°C 10' 95°C 345' alignement 300mJ 60'' 65°C 10' 95°C 30'	5' 2h30 15' 2h30 10'
	recuit	135°C 2h	2h

TABLE A.1 – Etapes à suivre pour la fabrication d'un moule avec deux couches de 6 et 30 μm .

Annexe B

Schémas des différentes ondes acoustiques

Nous décrivons ici les différentes ondes acoustiques qui existent dans les solides : les ondes de compression et de cisaillement en volume, les ondes de Lamb, de Rayleigh et de Love en surface. Nous donnons aussi les vitesses de ces ondes pour le verre et le PDMS. Les vitesses des ondes de compression c_P et de cisaillement c_S peuvent aussi être calculées si le module d'Young E et le coefficient de Poisson ν du matériau sont connus.

$$c_P = \sqrt{\frac{E}{3\rho(1 - 2\nu)}} \quad (\text{B.1})$$

$$c_S = \sqrt{\frac{E}{2\rho(1 + \nu)}} \quad (\text{B.2})$$

Les ondes de Rayleigh sont bien localisées sur la surface. Les molécules décrivent des ellipses dont l'amplitude décroît exponentiellement avec la profondeur, ce qui fait penser à la propagation des vagues sur l'eau. La longueur d'onde doit être petite devant l'épaisseur du matériau, pouvant être considéré comme semi-infini. Les ondes de Lamb surviennent si cette longueur d'onde est de l'ordre de l'épaisseur. Celui-ci vibre alors comme un tapis que l'on secoue, mais avec 2 modes possibles : symétrique et anti-symétrique.

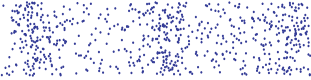
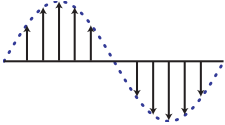



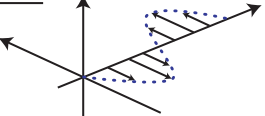
		C_{verre}	C_{PDMS}
	<u>volume</u>		
onde P ou de compression		5900 m/s [42]	1030 m/s* [42]
	<u>volume</u>		
onde L ou de cisaillement		2200 m/s [42]	~30 m/s eq.(B.2)
	<u>surface : $\lambda \ll e$</u>		
onde de Rayleigh		2200 m/s	~30 m/s
	<u>surface : $\lambda \gtrsim e$</u>		
onde de Lamb	symétrique 	~800 m/s* à 100 kHz	
	antisymétrique 		
	<u>surface</u>		
onde de Love			

FIGURE B.1 – Schéma des différentes ondes acoustiques dans les solides. Les valeurs étoilées * proviennent de mesures effectuées dans le chapitre 2.

Bibliographie

- [1] V. F. K. Bjerknes. *Fields of force*. Columbia University Press, New York, 1906.
- [2] M. Minnaert. On musical air-bubbles and the sound of running water. *Philosophical Magazine*, 16 :235–248, 1933.
- [3] K. Yosioka and Y. Kawasima. Acoustic radiation pressure on a compressible sphere. *Acustica*, 5 :167–172, 1955.
- [4] H. Lamb. *Hydrodynamics*. Cambridge, 1932.
- [5] A. Prosperetti. Bubbles. *Physics of fluids*, 16 :1852, 2004.
- [6] Can F. Delale, Gretar Tryggvason, and Selman Nas. Cylindrical bubble dynamics : Exact and direct numerical simulation results. *Physics of Fluids*, 20(4) :040903, 2008.
- [7] T. G. Leighton. *The Acoustic Bubble*. Academic Press, 1994.
- [8] T. Barbat, N. Ashgriz, and C.-S. Liu. Dynamics of two interacting bubbles in an acoustic field. *Journal of Fluid Mechanics*, 389 :137–168, 1999.
- [9] A. A. Doinikov. Acoustic radiation interparticle forces in a compressible fluid. *Journal of Fluid Mechanics*, 444(1) :1–21, 2001.
- [10] A. L. Klibanov. Ultrasound contrast agents : Development of the field and current status. *Top. Curr. Chem.*, 222 :73–106, 2002.
- [11] Frederick K. Balagadde, Lingchong You, Carl L. Hansen, Frances H. Arnold, and Stephen R. Quake. Long-term monitoring of bacteria undergoing programmed population control in a microchemostat. *Science*, 309(5731) :137–140, 2005.
- [12] D. Holmes, D. Pettigrew, C. H. Reccius, J. D. Gwyer, C. van Berkel, J. Holloway, D. E. Davies, and H. Morgan. Leukocyte analysis and differentiation using high speed microfluidic single cell impedance cytometry. *Lab on a Chip*, 9 :2881–2889, 2009.
- [13] Manouk Abkarian, Magalie Faivre, Renita Horton, Kristian Smistrup, Catherine A Best-Popescu, and Howard A Stone. Cellular-scale hydrodynamics. *Biomed Mater*, 3(3) :034011, Sep 2008.
- [14] Jan-Paul Raven. *Micromousse : génération, écoulement et manipulation*. PhD thesis, Université Grenoble I, 2007.

- [15] Jan-Paul Raven and Philippe Marmottant. Periodic microfluidic bubbling oscillator : insight into the stability of two-phase microflows. *Phys Rev Lett*, 97(15) :154501, Oct 2006.
- [16] Jan-Paul Raven and Philippe Marmottant. Microfluidic crystals : dynamic interplay between rearrangement waves and flow. *Phys Rev Lett*, 102(8) :084501, Feb 2009.
- [17] David C. Duffy, J. Cooper McDonald, Olivier J. A. Schueller, and George M. Whitesides. Rapid prototyping of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane). *Analytical Chemistry*, 70 :4974–4984, 1998.
- [18] P. Paik, V. K. Pamula, and R. B. Fair. Rapid droplet mixers for digital microfluidic systems. *Lab Chip*, 3(4) :253–259, Nov 2003.
- [19] G. F. Christopher and S. L. Anna. Microfluidic methods for generating continuous droplet streams. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 40(19) :R319, 2007.
- [20] E. Castro-Hernández, V. Gundabala, A. Fernández-Nieves, and J. M. Gordillo. Scaling the drop size in coflow experiments. *New Journal of Physics*, 11(7) :075021, 2009.
- [21] T. Thorsen, R. W. Roberts, F. H. Arnold, and S. R. Quake. Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Phys Rev Lett*, 86(18) :4163–4166, Apr 2001.
- [22] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone. Formation of dispersions using “flow focusing” in microchannels. *Applied Physics Letters*, 82(3) :364–366, 2003.
- [23] Brian J. Kirby. *Micro- and Nanoscale Fluid Mechanics : Transport in Microfluidic Devices*. Cambridge University Press, 2009.
- [24] Pei Yu Chiou, Aaron T Ohta, and Ming C Wu. Massively parallel manipulation of single cells and microparticles using optical images. *Nature*, 436(7049) :370–372, Jul 2005.
- [25] J. Voldman. Electrical forces for microscale cell manipulation. *Annual Review of Biomedical Engineering*, 8 :425–454, 2006.
- [26] M. G. Pollack, A. D. Shenderov, and R. B. Fair. Electrowetting-based actuation of droplets for integrated microfluidics. *Lab Chip*, 2(2) :96–101, May 2002.
- [27] H. Chetouani, C. Jeandey, V. Haguet, H. Rostaing, C. Dieppedale, J.-F. Jacquot, T. Kerlin, and G. Reyne. Principle and analysis of a two-dimensional onchip magnetophoresis of bioparticles for contamination-free biochemical reactors. *Magnetics, IEEE Transactions on*, 43(4) :1673 –1676, april 2007.
- [28] A. Ashkin. Acceleration and trapping of particles by radiation pressure. *Physical Review Letters*, 24 :156–159, 1970.

- [29] S. Gaugiran, S. Gétin, J. Fedeli, G. Colas, A. Fuchs, F. Chatelain, and J. Dérourard. Optical manipulation of microparticles and cells on silicon nitride waveguides. *Opt. Express*, 13(18) :6956–6963, 2005.
- [30] M. L. Cordero, D. R. Burnham, C. N. Baroud, and D. McGloin. Thermo-capillary manipulation of droplets using holographic beam shaping : Microfluidic pin ball. *Applied Physics Letters*, 93(3) :034107, 2008.
- [31] T. Laurell, F. Petersson, and A. Nilsson. Chip integrated strategies for acoustic separation and manipulation of cells and particles. *Chemical Society Reviews*, 36 :492–506, 2007.
- [32] J. Lighthill. Acoustic streaming. *Journal of Sound and Vibration*, 3 :391–418, 1978.
- [33] S. Kapishnikov, V. Kantsler, and V. Steinberg. Continuous particle size separation and size sorting using ultrasound in a microchannel. *Journal of Statistical Mechanics :Theory and Experiment*, P01012 :1–15, 2006.
- [34] J. Wu. Acoustical tweezers. *Journal of the Acoustical Society of America*, 89 :2140–2143, 1991.
- [35] J. Lee, K. Ha, and K. K. Shung. A theoretical study of the feasibility of acoustical tweezers : Ray acoustics approach. *Journal of the Acoustical Society of America*, 117 :3273–3280, 2005.
- [36] D. Fuard, T. Tzvetkova-Chevolleau, S. Decossas, P. Tracqui, and P. Schiavone. Optimization of poly-di-methyl-siloxane (pdms) substrates for studying cellular adhesion and motility. *Microelectronic Engineering*, 85 :1289–1293, 2008.
- [37] Dhananjay Bodas and Chantal Khan-Malek. Formation of more stable hydrophilic surfaces of pdms by plasma and chemical treatments. *Microelectronic Engineering*, 83(4-9) :1277 – 1279, 2006.
- [38] F. Malloggi, N. Pannacci, R. Attia, F. Monti, P. Mary, H. Willaime, P. Tabeling, B. Cabane, and P. Poncet. Monodisperse colloids synthesized with nanofluidic technology. *Langmuir*, 26(4) :2369–2373, 2010.
- [39] Nicolas Pannacci, Henrik Bruus, Denis Bartolo, Isabelle Etchart, Thibaut Lockhart, Yves Hennequin, Hervé Willaime, and Patrick Tabeling. Equilibrium and nonequilibrium states in microfluidic double emulsions. *Physical Review Letters*, 101(16) :164502, 2008.
- [40] M. Seo, C. Paquet, Z. Nie, S. Xu, and E. Kumacheva. Microfluidic consecutive flow-focusing droplet generators. *Soft Matter*, 3 :986–992, 2007.
- [41] Albrecht Haake. *Micromanipulation of small particles with ultrasound*. PhD thesis, Swis Federal Institute of Technology Zurich, 2004.
- [42] www.ondacorp.com/tecref_acoustictable.shtml.
- [43] [http ://rsbweb.nih.gov/ij/](http://rsbweb.nih.gov/ij/).

- [44] J. Wan, A. Bick, M. Sullivan, and H. A. Stone. Controllable microfluidic production of microbubbles in water-in-oil emulsions and the formation of porous microparticles. *Advanced Materials*, 20(17) :3314–3318, 2008.
- [45] M. Rosario Rodríguez Niño and J.M. Rodríguez Patino. Surface tension of bovine serum albumin and tween 20 at the air-aqueous interface. *Journal of the American Oil Chemists' Society*, 75 :1241–1248, 1998.
- [46] M. C. Wilkinson. Extended use of, and comments on, the drop-weight (drop-volume) technique for the determination of surface and interfacial tensions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 40(1) :14–26, 1972.
- [47] F. P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10 :166–188, 1961.
- [48] M. J. Fuerstman, A. Lai, M. E. Thurlow, S. S. Shevkoplyas, H. A. Stone, and G. M. Whitesides. The pressure drop along rectangular microchannels containing bubbles. *Lab on a Chip*, 7 :1479–1489, 2007.
- [49] S. R. K. Maruvada and C. W. Parka. Retarded motion of bubbles in heleshaw cells. *Physics of fluids*, 8 :3229–3233, 1996.
- [50] Geoffrey Taylor and P. G. Saffman. A note on the motion of bubbles in a hele-shaw cell and porous medium. *Q J Mechanics Appl Math*, 12(3) :265–279, 1959.
- [51] N.D. Denkov, V. Subramanian, D. Gurovich, and A. Lips. Wall slip and viscous dissipation in sheared foams : Effect of surface mobility. *Colloids and Surfaces A*, 263 :129–145, 2005.
- [52] J. Emile, A. Salonen, B. Dollet, and A. Saint-Jalmes. A systematic and quantitative study of the link between foam slipping and interfacial viscoelasticity. *Langmuir*, 25(23) :13412–13418, December 2009.
- [53] R. Höhler and S. Cohen-Addad. Rheology of liquid foam. *J. Phys. Cond. Matt.*, 17 :R1041–R1069, 2005.
- [54] E. Terriac, J. Etrillard, and I. Cantat. Viscous force exerted on a foam at a solid boundary : Influence of the liquid fraction and of the bubble size. *Europhysics Letters*, 74 :909–915, 2006.
- [55] S.-Y Sung and Y.-G. Lee. Trapping of a micro-bubble by non-paraxial gaussian beam : computation using the fdtd method. *Optics Express*, 16(5) :3463–3473, 2008.
- [56] Louis V. King. On the Acoustic Radiation Pressure on Spheres. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A - Mathematical and Physical Sciences*, 147(861) :212–240, 1934.
- [57] Michinao Hashimoto, Piotr Garstecki, and George M Whitesides. Synthesis of composite emulsions and complex foams with the use of microfluidic flow-focusing devices. *Small*, 3(10) :1792–1802, Oct 2007.

- [58] L.A. Crum. Acoustic force on a liquid droplet in an acoustic stationary wave. *Journal of the Acoustical Society of America*, 50 :157–163, 1971.
- [59] S. Protiere, A. Boudaoud, and Y. Couder. Particle-wave association on a fluid interface. *Journal of Fluid Mechanics*, 554(1) :85–108, 2006.
- [60] M. Versluis, D. E. Goertz, P. Palanchon, I. Heitman, S. M. van der Meer, B. Dollet, N. de Jong, and D. Lohse. Microbubble shape oscillations excited through ultrasonic parametric driving. soumis à *Physical Reviews E*, 2010.
- [61] R. Dangla and C. Poulain. When sound slows down bubbles. *Physics of Fluids*, 22(4) :041703, 2010.
- [62] S. Chandrasekhar. *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford University Press, 1961.
- [63] W. Drenckhan, B. Dollet, S. Hutzler, and F. Elias. Soap films under large-amplitude oscillations. *Philosophical Magazine Letters*, 88 :669–677, 2008.
- [64] V. Leroy, A. Bretagne, M. Fink, H. Willaime, P. Tabeling, and A. Tourin. Design and characterization of bubble phononic crystals. *Applied Physics Letters*, 95(17) :171904, 2009.
- [65] A. Renaudin, J.-P. Sozanski, B. Verbeke, V. Zhang, P. Tabourier, and C. Druon. Monitoring saw-actuated microdroplets in view of biological applications. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 138(1) :374 – 382, 2009.
- [66] P. Brunet, M. Baudoin, O. Bou Matar, and F. Zoueshtiagh. Droplet displacements and oscillations induced by ultrasonic surface acoustic waves : a quantitative study. *Phys Rev E Stat Nonlin Soft Matter Phys*, 81 :036315, Mar 2010.
- [67] Thomas Franke, Adam R Abate, David A Weitz, and Achim Wixforth. Surface acoustic wave (saw) directed droplet flow in microfluidics for pdms devices. *Lab Chip*, 9(18) :2625–2627, Sep 2009.
- [68] J. Shi, D. Ahmed, X. Mao, S.-C. S. Lin, A. Lawit, and T. Jun Huang. Acoustic tweezers : patterning cells and microparticles using standing surface acoustic waves (ssaw). *Lab on a Chip*, 9(20) :2890–2895, 2009.

Résumé

Cette thèse traite de l'action des ondes acoustiques sur des bulles micrométriques excitées à leur fréquence de résonance. En effet, les bulles peuvent être considérées comme des oscillateurs mécaniques et les forces acoustiques à leur résonance, appelées forces de Bjerknes, ont des propriétés non triviales. De plus, les bulles interagissent entre elles par l'émission d'un champ secondaire, menant à leur auto-organisation sur un motif périodique. Ici, les bulles sont confinées dans des microcanaux, elles ne sont pas sphériques et frottent fortement sur les parois. L'étude expérimentale des forces acoustiques (primaire et secondaire) est alors précédée par la modélisation de l'écoulement des bulles, liant la friction sur les parois aux forces externes appliquées. Plusieurs applications aux laboratoires sur puce sont développées, dont le tri en taille, la division asymétrique contrôlée, l'aiguillage automatique à une bifurcation, et la manipulation de goutte.

Mots-clés : bulle, microfluidique, acoustique, émulsion, laboratoire sur puce

Abstract

This thesis is about the action of acoustic waves on micrometer-sized bubbles excited at their resonance frequency. Indeed, bubbles can be considered as mechanical oscillators and the acoustic forces at the resonance, called Bjerknes forces, have non ordinary properties. Moreover, the bubbles interact between them by the emission of a secondary acoustic field, leading to their self-organization on a periodic mesh. Here, the bubbles are confined in microchannels, they are not spherical and rub against the walls. The experimental study of the acoustic forces (primary and secondary force) is thus preceded by the modeling of the bubble flow, linking the wall friction to the applied external forces. Several applications dedicated to the lab-on-a-chip are developed, with the size sorting, the controlled asymmetric break-up, the automatic switching at a bifurcation and the manipulation of drops.

Keywords : bubble, microfluidic, acoustic, emulsion, lab on chip