



HAL
open science

Écoulements en gouttes activées par électromouillage

Rachid Malk

► **To cite this version:**

Rachid Malk. Écoulements en gouttes activées par électromouillage. Autre. Université de Grenoble, 2011. Français. NNT : 2011GRENI003 . tel-00579641

HAL Id: tel-00579641

<https://theses.hal.science/tel-00579641v1>

Submitted on 24 Mar 2011

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : *Mécanique des fluides, Procédés, Energétique*

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Rachid MALK

Thèse dirigée par **Laurent DAVOUST** et
codirigée par **Yves FOUILLET**

préparée au sein du **Laboratoire des Composants Intégrés
pour le Vivant (LCIV)** et du **Laboratoire des Écoulements
Géophysiques et Industriels (LEGI)**
dans l'**École Doctorale INGENIERIE, MATERIAUX,
MECANIQUE, ENERGETIQUE, ENVIRONNEMENT,
PROCEDES, PRODUCTION (IMEP2)**

Écoulements en gouttes activés par électromouillage

Thèse soutenue publiquement le **26 Janvier 2011**,
devant le jury composé de :

M. Gilbert REYNE

Directeur de recherche, Université de Grenoble, Examinateur

M. Vincent SENEZ

Directeur de recherche, Université de Lille, Rapporteur

M. Liviu NICU

Chargé de Recherche, Université de Toulouse, Rapporteur

M. Laurent DAVOUST

Professeur, Université de Grenoble, Directeur de thèse

M. Yves FOUILLET

Docteur, CEA Grenoble, Co-encadrant

Mme. Marguerite Bienia

Maître de conférence, Université de Limoges, Examinatrice



Remerciements

Je remercie tout d'abord les membres du jury : les correcteurs M. Vincent Senez et M. Liviu Nicu pour leur patience et l'énergie dépensée à la lecture du manuscrit ; l'examinatrice Mme Marguerite Bienia pour le vif intérêt apporté à mon travail et M. Gilbert Reyne qui m'a fait l'honneur de présider le jury.

Je remercie également très chaleureusement mon directeur de thèse, Laurent Davoust et mon encadrant CEA, Yves Fouillet. Ce travail de recherche n'aurait pas pu aboutir sans la qualité de leur encadrement. Merci de la confiance et de la liberté que vous m'avez offerte dans la réalisation de cette thèse mais également de la très grande disponibilité dont vous avez fait preuve tout au long de ce travail de recherche et ceci en dépit de vos emplois du temps particulièrement chargés. Pour finir, je voulais d'une part souligner la très bonne entente que nous avons eue durant ces trois années qui doit beaucoup à vos qualités humaines respectives, et d'autre part vous remercier pour le savoir technique et scientifique que vous m'avez transmis.

Pour mener à bien ce travail, j'ai pu bénéficier de l'aide d'un très grand nombre de personnes que j'aimerais ici saluer : merci donc à Claude Chabrol et à François Boizot, à Frédérique Mittler, Myriam Cubizolles, Lucie Baujard-Lamotte et Fabrice Navarro y Garcia, aux opticiens Mathieu Debbourdeau, Mathieu Dupoy et Jérôme Boutet. Je remercie également Xavier Médal de m'avoir formé à Labview, toute l'équipe d'électromouillage et en particulier Cyril Delattre, Gaël Castellan, Dorothee Jary, Frédéric Bottausci ainsi qu'Arnaud Rival pour l'esprit d'entre-aide et de solidarité dont nous avons fait preuve pour mener à bien nos thèses respectives. Un grand merci également aux responsables des laboratoires fluidiques, Jean-Maxime Roux et Olivier Fuchs, pour les nombreux conseils qu'ils ont su me délivrer pour la réalisation de mes expériences.

De plus, si ces trois années de thèse sont passées aussi vite, c'est aussi en grande partie grâce à la très bonne ambiance qui a régné dans les laboratoires LCIV et LEGI/MIP et en dehors, et à ce titre je remercie toutes les personnes que j'ai pu rencontrer durant cette thèse : merci donc à Laura et aux collègues de labos, Camille, Julien, Claire, Sophie, Patricia, Valérie, Magalie, Elodie, Faïdjiba, Elise, Denis, Olivier, Manuelle, Tamara, Quentin, Thomas, Prisca, Raphaël, Johannes, Corinne et beaucoup d'autres encore.

Bien que Grenoble soit la ville du ski et des randonnées, c'est sur les terrains de foot que j'ai passé l'essentiel de mes week-ends (et fins de journée de travail...) et partagé de très bons moments avec mes coéquipiers des Taillés et de l'AS Cea foot. Un grand merci donc à tous ces footeux et en particulier à Vincent, Abdila, Mamadou, Tony, Anas, Marouf, Yann, Seïdou, Angelo, Ali, Youssef, Khaled, Darouesh, Wayne et Ahmed.

Je remercie également mes amis, Farouk, qui s'est spécialement déplacé pour la soutenance afin de nous préparer du thé à la menthe, Tarik et Karim, ainsi que tous mes amis d'enfance du quartier de la Roquette.

Enfin, je remercie tout particulièrement celle que j'ai rencontrée peu de temps avant ma soutenance de thèse, et dont la présence m'a apaisé et évité de longues nuits de stress. Un très grand merci donc à toi et *inchallah* pour la suite comme on dit chez nous...

Pour finir, je remercie ma famille pour le soutien qu'elle m'a apporté tout au long de mes études. Merci en particulier à mes parents qui, dès ma plus tendre enfance, m'ont inculqué l'importance des études et ont fait en sorte que je ne manque de rien pour pouvoir les mener à bien. La réalisation de cette thèse doit beaucoup à l'éducation qu'ils m'ont transmise et à l'amour qu'ils me portent.

Table des matières :

NOMENCLATURE	9
INTRODUCTION GENERALE	13
CHAPITRE 1 : Contexte de l'étude	17
Partie A : Laboratoires sur puces et microfluidique	19
1. Concept de laboratoire sur puce	19
2. La microfluidique	21
3. Microfluidique continue et discrète	24
Partie B : de l'apport de l'actionnement électrique	31
1. De l'électromagnétisme à l'électrostatique	32
2. Couplage ElectroHydrodynamique	37
3. Illustration du bilan normal de quantité de mouvement	38
4. Illustration du bilan tangentiel de quantité de mouvement	40
Partie C : Electromouillage sur diélectrique, principes et applications	41
1. Modélisation de l'EWOD par l'approche énergétique	42
2. Applications en optique	45
3. Applications en biotechnologie	46
Partie D : Electromouillage sur diélectrique : phénomènes associés et enjeux de la modélisation	51
1. Approche locale par le tenseur de Maxwell	52
2. Electromouillage en signal alternatif	54
3. Objectifs de la thèse	56
CHAPITRE 2 : Développements technologiques et banc d'expérimentation	61
Partie A : Les puces à électromouillage	63
1. Les puces EWOD	63
2. De la conception à la réalisation des puces	65
Partie B : Montage et protocoles expérimentaux	69
1. Banc expérimental	69
2. Caractérisation des matériaux	75
3. Protocoles expérimentaux	76
Partie C : Réalisation de logiciels de pilotage et d'analyse des expériences	79
1. Motivations et enjeux	79
2. Logiciel dédié à l'électromouillage : <i>Easy-EWOD</i>	80
3. Logiciel dédié aux oscillations : <i>Oscill-EWOD</i>	82
4. Les expériences d'écoulement	86
CHAPITRE 3 : Electromouillage et contraintes électriques de surface	91
Partie A : Observations expérimentales en électromouillage	93
1. Protocole expérimental	93
2. Electromouillage en configuration coplanaire	94
Partie B : Calculs électrostatiques par simulation numérique sous air	107
1. Modèle électrostatique en électromouillage	108
2. Mise en place du calcul numérique	109
3. Résultats numériques et validation du modèle	111
4. Limites et difficultés de la modélisation	116
Partie C : Exploration de l'électrohydrodynamique de type Taylor-Melcher	123
1. Ecoulement quadripolaire induit par l'électrohydrodynamique tangentielle	124
2. L'expérience de Taylor-Melcher	125
3. Adaptation de l'expérience de Taylor et Melcher	127
4. Configurations en goutte	134
5. Régime d'écoulement à très haute fréquence	137

CHAPITRE 4 : Oscillations et écoulements hydrodynamiques en goutte	143
Partie A : Oscillations de gouttes induites par l'électromouillage	145
1. Observations préliminaires	146
2. Modèles d'oscillations de goutte	147
3. Etude quantitative des oscillations de goutte	153
Partie B : Courant de dérive induit dans les gouttes	163
1. Observations préliminaires	163
2. Ecoulement hydrodynamique induit par un phénomène oscillatoire	163
3. Résolution numérique du modèle d'écoulements en goutte	168
4. Ecoulements axisymétriques en goutte	172
5. Ecoulements non-axisymétriques en goutte	179
6. Spectre d'écoulements en goutte	181
Partie C : Configuration d'écoulement quadripolaire	183
1. Configuration d'étude	184
2. Observation des écoulements	184
3. Electromouillage et régime d'oscillation en configuration non axisymétrique	185
CHAPITRE 5 : Applications potentielles	199
Partie A : Manipulation d'objets dans les gouttes	201
1. Dispositif expérimental et protocole	202
2. Mise en évidence de recirculations sous huile avec des billes de polymère	202
3. Recirculations en goutte contenant des cellules biologiques	204
4. Eléments d'explication	207
5. Discussion sur l'exploitation des recirculations en configuration ouverte	211
Partie B : Brassage en configuration fermée	213
1. Puce d'électromouillage en configuration fermée	214
2. Ecoulement hydrodynamique en configuration fermée	215
3. Mélange en goutte en configuration fermée	217
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES	223
ANNEXES	227
<i>Annexe 1 : Exemple d'utilisation du logiciel Easy Ewod</i>	229
<i>Annexe 2 : Polynômes de Legendre</i>	231
<i>Annexe 3 : Expression des vitesses de dérive utilisée dans le modèle d'écoulement</i>	233
BIBLIOGRAPHIE	237

NOMENCLATURE

Conventions employées :

- Grandeurs scalaires : a .
- Grandeurs vectorielles : \mathbf{a} .
- Grandeur tensorielle : $\overline{\mathbf{T}}_e$.
- Le symbole 'étoile' représente une grandeur complexe a^* de partie réelle $\text{Re}(a^*)$, de partie imaginaire $\text{Im}(a^*)$ et de conjugué $\text{Conj}(a^*)$.
- Le symbole « \wedge » représente une grandeur adimensionnalisée par une valeur caractéristique : $\wedge a$.
- A l'interface entre deux milieux externe et interne, e et i dont la normale est orientée vers le milieu e , le saut de la grandeur a s'écrit : $\|a\| = a^e - a^i$.

Sigles :

EHD	Electrohydrodynamique.
EWOD	<i>Electrowetting on dielectric</i> (électromouillage sur diélectrique).
PBS	<i>Phosphate Buffered Saline</i> (tampon phosphate salin).
PIV	<i>Particle Image Velocimetry</i> (vélocimétrie par image de particules).
PCR	<i>Polymerase Chain Reaction</i> (réaction en chaîne par polymérase).
TCL	<i>Triple contact line</i> (ligne triple).
TM	Taylor-Melcher

Grandeurs utilisés :

Symbole	Signification	Unité
A_k	Amplitude d'oscillation du mode k	m
C	Capacité électrique par unité de surface	$F.m^{-2}$
d	Epaisseur de couche diélectrique	m
\mathbf{E}	Champ électrique	$V.m^{-1}$
f	Fréquence du signal électrique	Hz
g	Espace inter-électrodes	m
\mathbf{g}	Vecteur accélération gravitationnelle	$m.s^{-2}$
\mathbf{j}	Vecteur densité de courant	$A.m^{-2}$
\mathbf{n}	Vecteur unitaire normal à une interface	-
N_{EM}	Nombre d'électromouillage	-
p	Pression	$N.m^{-2}$
P_k	Polynôme de Legendre de degré k	-
q	Charge électrique en volume	$C.m^{-3}$
q_s	Charge électrique surfacique	$C.m^{-2}$
R_0	Rayon moyen de la goutte	m
Re_L	Nombre de Reynolds	-
Re_s	Nombre de Reynolds dit de <i>streaming</i>	-
T_{EM}	Tension effective d'électromouillage	$N.m^{-1}$
T_{TM}	Tension effective de Taylor-Melcher	$N.m^{-1}$
\mathbf{u}	Vecteur vitesse	$m.s^{-1}$

U_∞	Amplitude de vitesse oscillante	$m.s^{-1}$
U_s	Amplitude de vitesse de dérive	$m.s^{-1}$
V	Potentiel électrique	V
γ	Tension de surface	$N.m^{-1}$
ϵ_0 et ϵ_r	Permittivité électrique et permittivité électrique relative	$F.m^{-1}$
η	Viscosité dynamique	Pa.s
θ_0	Angle de Young	rad
θ_m	Angle de contact d'une goutte	rad
ξ	Pulsation d'oscillation de la goutte	Hz
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-3}$
σ	Conductivité électrique	$S.m^{-1}$
ψ	Déphasage	rad
ω	Pulsation du signal électrique	Hz
δ_s	Epaisseur de la couche de Stokes	m
Φ	Potentiel de vitesse	$m^2.s^{-1}$
$\hat{\Psi}$	Potentiel vecteur de vitesse adimensionné	-
$\underline{\underline{T}}_h$	Tenseur des contraintes hydrodynamiques	$N.m^{-2}$
$\underline{\underline{T}}_e$	Tenseur électrique de Maxwell	$N.m^{-2}$

Exposants et Indices courants :

exposant Signification

i	grandeur surfacique évaluée dans le milieu 'intérieur'
e	grandeur surfacique évaluée dans le milieu 'extérieur'
g	grandeur surfacique évaluée dans la goutte
d	grandeur surfacique évaluée à la surface du diélectrique

indice Signification

k	grandeur relative au mode oscillant de degré k
k_0	grandeur évaluée à la résonance du mode k

INTRODUCTION GENERALE

Les laboratoires sur puce sont des systèmes d'analyse miniaturisés ayant vocation à intégrer des protocoles biologiques ou chimiques. De la génomique à la protéomique en passant par l'étude de cellules uniques, de nombreux domaines de la biologie sont concernés par le développement de ces microcomposants. Les procédés de fabrication empruntés au secteur des microtechnologies permettent de réaliser des composants toujours plus petits et plus fiables repoussant ainsi sans cesse les limites d'intégrabilité des protocoles les plus complexes et ouvrant la voie à de nouvelles possibilités d'étude en biologie.

L'intégration de protocoles en microsystème pose néanmoins des problématiques d'ordre scientifique auxquelles la microfluidique tente de répondre. Cette discipline a connu un essor très important ces dernières années portée notamment par le développement des laboratoires sur puce. La réalisation de fonctions fluidiques telles que le déplacement, le mélange, l'analyse et la séparation d'échantillons sont en effet des opérations dont la maîtrise est indispensable pour le développement de ces microsystèmes.

Centre de microtechnologies, le CEA-LETI MINATEC se consacre notamment depuis quelques années au développement de ces laboratoires sur puce au sein du département DTBS (Département de Technologies pour la Biologie et la Santé) et plus particulièrement dans le service SBSC (Service Bio-System on Chip). Le développement de projets orientés vers des applications en microsystèmes se fait en parallèle à des études plus fondamentales concernant certains aspects de la microfluidique. A cet effet, une convention de collaboration PIM (Particule-Interface-Microfluidique) a été mise en place avec le LEGI (Laboratoire d'Écoulements Géophysiques et Industriels), unité mixte de recherche, dans laquelle s'inscrit le sujet de cette thèse.

Initié en 2003, le projet Smartdrop est un des exemples de laboratoire sur puce développé dans le laboratoire. Le fonctionnement repose sur le principe d'électromouillage permettant la manipulation d'échantillons discrets à partir de champs électriques. Alors que l'essentiel des efforts du projet est porté sur le développement du microsystème comprenant les aspects technologiques, biologiques et microfluidiques, des expériences exploratoires ont mis en évidence des recirculations hydrodynamiques au sein de gouttes activées par électromouillage. Ce phénomène intrigant présentait alors des caractéristiques particulières : des géométries d'électrodes pouvaient induire une structure quadripolaire très stable tandis que pour d'autres la structure d'écoulement était plus aléatoire.

La possibilité de maîtriser et d'exploiter ces écoulements afin de développer d'éventuelles fonctions fluidiques en goutte (centrifugation, mélange, manipulation...) ouvre des perspectives applicatives intéressantes. Le phénomène d'écoulements en goutte activés par l'électromouillage n'est pas référencé dans la littérature. L'objectif de cette thèse est précisément la compréhension et la maîtrise de ce phénomène.

Deux axes d'études ont été explorés dans ce sens de manière expérimentale et théorique. Le travail présenté dans ce rapport s'organise suivant 5 chapitres ; chacun d'entre eux étant subdivisé en parties.

Le **chapitre 1** introduit le contexte de l'étude. Le développement des laboratoires sur puce et l'essor de la microfluidique y sont présentés (**partie A**). Les problématiques de manipulation des fluides à petite échelle sont soulevées et le recours aux champs électriques comme mécanisme de manipulation est introduit (**partie B**). Le phénomène d'électromouillage et l'action des contraintes électriques tangentielles y sont illustrés. Phénomène central dans notre étude, une partie entière est consacrée à l'électromouillage et ses applications (**partie C**). La **partie D** concerne les phénomènes associés à l'électromouillage et en particulier les écoulements en goutte. Les objectifs de la thèse et la configuration d'étude sont finalement présentés.

Le **chapitre 2** est consacré aux aspects technologiques des puces, au montage et à la caractérisation du banc expérimental ainsi qu'au développement des outils d'analyse. Dans la **partie A**, les caractéristiques nécessaires au fonctionnement des puces et les procédés de fabrication dont nous avons bénéficié sont exposés. Les deux lots de puces réalisés au cours de cette thèse sont détaillés et les motifs d'électrodes retenus pour l'étude sont justifiés. Dans la **partie B**, les différents composants du banc expérimental sont présentés et caractérisés. Les problèmes auxquels nous avons été confrontés sont exposés et les solutions trouvées sont mises en avant. Les protocoles d'études sont alors définis. Enfin, les programmes de pilotage et d'analyse développés dans le but de permettre la réalisation de ces protocoles sont présentés (**partie C**).

Dans le **chapitre 3**, l'électromouillage sur diélectrique en configuration coplanaire est étudié. La **partie A** concerne une étude expérimentale sur l'électromouillage. Le mouillage de la goutte est alors étudié et les choix menant à définir la configuration d'étude principale servant de modèle physique pour la suite sont justifiés. Dans la **partie B**, une étude numérique sur l'électromouillage est entreprise afin de caractériser la distribution du champ électrique, étape préliminaire à la **partie C** consacrée à l'étude des forces électriques tangentielles en électromouillage. L'implication de ces forces sur le phénomène d'écoulement est alors discutée.

Le **chapitre 4** concerne l'étude du phénomène d'oscillations de goutte et de courant de dérive. Dans la **partie A**, les oscillations axisymétriques de gouttes sont décrites à travers un modèle linéaire qui est ensuite confronté aux observations expérimentales. La caractérisation des oscillations de goutte est ensuite utilisée dans la **partie B**. Le phénomène de courant de dérive est introduit et un modèle d'écoulement basé sur les oscillations de gouttes est présenté. Les résultats de sa résolution numérique sont alors comparés aux expériences. La **partie C** est consacrée à l'étude de la structure d'écoulement quadripolaire observée préalablement à la thèse. La configuration d'électrodes hémi-circulaires est alors remplacée par une configuration rectangulaire et l'observation expérimentale des oscillations de la goutte permet de mettre au point un modèle numérique basé sur le courant de dérive et permettant de reproduire la configuration d'écoulement.

Enfin, le **chapitre 5** est un chapitre d'ouverture consistant à proposer des pistes applicatives à explorer. La **partie A** permet de montrer que les phénomènes d'écoulement se retrouvent dans une configuration proche des conditions d'utilisation pratiques, à savoir sous huile et avec des cellules biologiques. Le potentiel applicatif de ces écoulements est discuté. Dans la **partie B**, on utilise la puce du projet Smartdrop pour montrer l'existence des recirculations en configuration fermée. Le rôle de ces recirculations dans le brassage en goutte est analysé.

CHAPITRE 1 : Contexte de l'étude

Ce chapitre permet de présenter le contexte et les enjeux de la thèse. Les laboratoires sur puce ainsi que la microfluidique, discipline scientifique qui leur est associée, sont abordés dans la **partie A**.

La **partie B** est quant à elle consacrée à l'actionnement électrique des fluides. Les principes de l'électrohydrodynamique (EHD) sont exposés et des exemples d'actionnements électriques sont illustrés. Parmi ces exemples, l'électromouillage sur diélectrique représente le phénomène central de cette thèse et est présenté dans la **partie C**.

La **partie D** permet alors d'aborder les enjeux scientifiques actuels liés à la modélisation de l'électromouillage sur diélectrique. Le phénomène d'écoulements hydrodynamiques en goutte est illustré et la problématique de la thèse est alors posée.

Partie A : Laboratoires sur puces et microfluidique

1. Concept de laboratoire sur puce

a. Définition et enjeux

Un laboratoire sur puce (ou labopuce) peut se définir comme un système d'analyse miniaturisé intégré dans un microcomposant dont la fonction est de réaliser des étapes d'un protocole biologique ou chimique. Lorsque le composant intègre la totalité de la séquence d'analyse, de l'échantillon brut à la lecture du résultat on parle de *Micro-Tas* (*Micro-Total Analysis System*).

L'idée séduisante d'utiliser les avancées de la microélectronique dans le domaine des *MEMS* (*MicroElectroMechanicalSystem*) et de les appliquer à des systèmes dédiés à l'analyse biologique et chimique a été introduite dans les années 1970 par les travaux précurseurs de S.C Terry (1975) mais il faut véritablement attendre le début des années 1990, lors de la cinquième conférence internationale de *Solid-State Sensors and Actuators* pour que le concept de *Micro-Tas* soit véritablement introduit [Manz, Graber et al. 1990].

Dès lors la multiplication des articles scientifiques traitant du domaine témoigne à la fois d'un vif intérêt de la communauté scientifique et des espoirs réels de concrétisation en applications commerciales.

L'intégration d'un protocole biologique sur un laboratoire sur puce présente en effet plusieurs côtés attrayants [Haeberle and Zengerle 2007]. Elle permet de réduire la consommation en réactif (parfois très coûteux) et en échantillon à analyser (parfois très rare donc précieux). Là où plusieurs mL sont utilisés dans les réacteurs conventionnels de type plaque à puits, les laboratoires sur puce manipulent des échantillons de quelques μL voire de quelques nL [Laser and Santiago 2004]. L'utilisation de petits volumes offre en outre la possibilité de développer des protocoles nouveaux basés par exemple sur la manipulation de cellules uniques [Yi, Li et al. 2006] et suscite ainsi un réel intérêt scientifique [Mellors, Jorabchi et al.]. Un deuxième intérêt de l'intégration d'un protocole dans un unique microsystème est la possibilité d'automatiser et de paralléliser l'ensemble des analyses permettant ainsi un gain de temps substantiel et une fiabilité accrue. En supprimant l'intervention humaine sur des protocoles long et fastidieux, on réduit par conséquent le risque d'erreur. Fournir des résultats précis, fiables et rapides à faible coût, tel est l'objectif affiché des laboratoires sur puce.

S'ils devaient en rester là, les laboratoires sur puces souffriraient de la comparaison avec les systèmes conventionnels dont les longues années d'utilisation ont apporté leurs lots d'améliorations et d'optimisations. Mais si les laboratoires sur puce présentent autant d'intérêts, c'est surtout parce qu'ils répondent à un besoin différent de celui des laboratoires conventionnels : le laboratoire sur puce a en effet vocation à être transporté directement sur le site d'analyse permettant de réaliser des mesures *in situ* ce qui limite les risques de dénaturation des échantillons prélevés ; dans le cas d'un dispositif de diagnostic *point of care*, le patient peut lui même effectuer ses analyses au jour le jour évitant les déplacements répétés

chez le médecin ou dans les laboratoires d'analyses conventionnels [Laksanasopin, Chin et al. 2009].

Les besoins ciblés des laboratoires sur puce sont divers et variés, à commencer par le domaine médical où le médecin pourra disposer d'un test rapide et faible pour appuyer un diagnostic, la sécurité sanitaire des aliments pour le contrôle de la qualité de la nourriture, l'analyse environnemental des cours d'eau [Loe-Mie, Marchand et al.]. Autant d'applications pour lesquelles des dispositifs portables miniaturisés gagneraient à être développés. Des perspectives d'utilisation prometteuses concerneront aussi les pays en voie de développement où le manque de structures et d'équipement d'analyse pourrait être compensé par l'utilisation de ces microsystèmes bon marché [Chin, Linder et al. 2007].

b. Laboratoires sur puce : La situation actuelle

L'intérêt suscité par les laboratoires sur puce n'a pas tardé à engendrer un marché économique grandissant comme l'attestent ces chiffres : les micro-systèmes représentent aujourd'hui 5 milliards de dollars annuel et l'on prévoit des taux de croissance de 20% pour les années à venir [Dittrich, Tachikawa et al. 2006]. Le marché de la microfluidique incluant tous les micro-composants tels que les micro-vannes, les capteurs d'écoulement gaz et liquide, les micro-pompes pour la dispense de médicament... représentait en 2003 entre 3 et 4,4 Milliards de dollar et les estimations tablent sur 6,2 milliards de dollar en 2011 [Tabeling 2003]. Ces chiffres illustrent la croissance soutenue du secteur des micro-systèmes pour le vivant. Ils s'expliquent par la mise sur le marché de micro-systèmes innovants et performants : en 1990, les premiers systèmes permettant d'intégrer sur une même puce plusieurs fonctions telles que l'électrophorèse [Burns, Johnson et al. 1998], la digestion enzymatique, le mélange et la séparation de réactifs [Jacobson, Hergenroder et al. 1994] voient le jour. Dix ans plus tard, les premiers laboratoires sur puce sont commercialisés. Citons par exemple le système *Agilent 2100 BioAnalyser* permettant l'identification des fragments d'ADN en 30 minutes à partir d'échantillons de 1 à 4 μl , ou encore la balise de détection environnementale *Idaho Technology* (Fig. 1(a)). Un inventaire non exhaustif des différents micro-systèmes déjà commercialisés est donné par Felton (2003).

L'un des domaines où les micro-systèmes offrent des possibilités très intéressantes d'un point de vue de la performance et de la portabilité concerne l'analyse du sang. Ainsi, en 2007, la société *Abbott Point of care Inc.* commercialise le système *FreeStyleLite* (Fig. 1(b)) permettant de réaliser des mesures de glycémie sur des microgouttes de sang de 0,3 μl en quelques secondes. Un deuxième système (le *i-stat*) dédié aux analyses dans le sang (hématologie...) est lancé peu après par la même société permettant la lecture des résultats en seulement 10 minutes (contre 10 h dans les laboratoires conventionnels).



Fig. 1 (a) Exemple de balise de détection environnementale proposée par idaho technology (<http://www.idahotech.com/rapid/index.html>). (b) Système FreestyleLite pour le contrôle de la glycémie.

En dépit de développements et de réussites encourageantes, il demeure néanmoins quelques obstacles importants qui freinent l'émergence complète de ces microsystèmes. D'une part, la mise sur le marché des microsystèmes nécessite des étapes de développement, d'optimisation et d'industrialisation qui demandent du temps et qui représentent donc un risque économique important auprès des industries pharmaceutiques traditionnelles. D'autres part, des verrous technologiques et scientifiques subsistent encore et doivent être levés afin d'exprimer pleinement le potentiel applicatif de ces microsystèmes [Fair 2007]. Certaines des problématiques majeures liées aux microsystèmes ont donné naissance à une discipline scientifique portant le nom de microfluidique.

2. La microfluidique

a. Qu'est ce que la microfluidique ?

La microfluidique comme son nom l'indique est la science qui étudie les écoulements à l'échelle microscopique. Le terme microfluidique couvre également par extension les aspects fluidiques liés au fonctionnement de ces microsystèmes à travers la réalisation des différents procédés impliqués pour manipuler des objets biologiques ou biochimiques. On peut donc parler d'un véritable génie des micro-procédés.

Comme le montre la figure 2, la microfluidique a connu un essor impressionnant ces dernières années motivé par le développement des laboratoires sur puce.

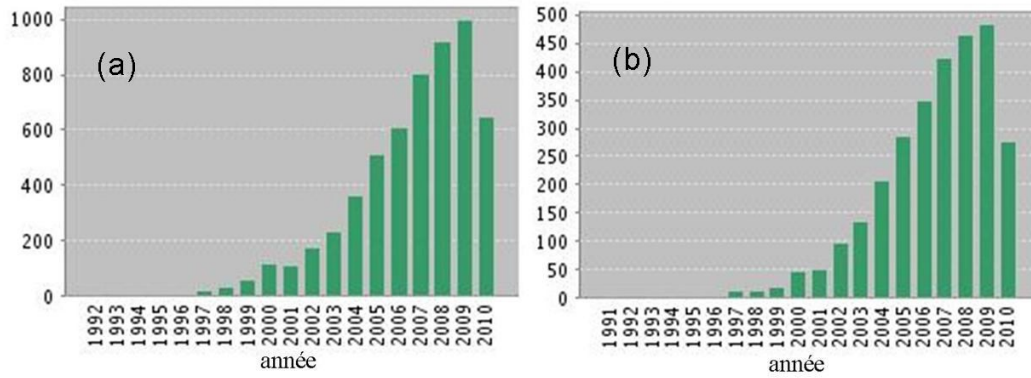


Fig. 2 (a) Nombre de publications par année concernant la microfluidique (a) et les laboratoires sur puces (b). Graphes issus de ISI Web of Knowledge.

Bien que le domaine d'application privilégié de la microfluidique soit la biologie et la chimie avec les laboratoires sur puce, il existe d'autres secteurs dans lesquels la microfluidique joue un rôle central : citons par exemple le domaine énergétique avec les micro-piles à combustible ou les applications thermiques telles que le refroidissement de composants électriques [Paik, Chakrabarty et al. 2008].

b. Déplacer, doser, mélange, trier, séparer et détecter à petite échelle

La très grande majorité des protocoles développés dans les laboratoires font intervenir des étapes mettant en jeu des volumes fluides : il est en effet assez rare de manipuler des réactifs sous forme solide ou gazeuse en biologie ou en chimie... Lorsque le protocole le permet, la mise en solution des produits est quasi systématique, car elle permet de faciliter la manipulation et le dosage des réactifs ainsi que d'améliorer les cinétiques de réaction en favorisant le mélange. A l'échelle macroscopique, les fonctions fluidiques élémentaires telles que le dosage de réactifs, la dilution, le mélange, le stockage ou la séparation sont réalisées par l'utilisation de pipettes, de plaques à puits, de vortex mélangeur etc.... Or, avec le passage à l'échelle micrométrique, les rapports de forces sont affectés et les fluides peuvent se comporter de manière très spécifique rendant les fonctions élémentaires difficiles à réaliser en micro-systèmes [Xia, Wan et al. 2005]. La clé du développement des laboratoires sur puce repose sur la capacité à mettre en œuvre des solutions fiables et robustes permettant d'assurer la réalisation de ces fonctions fluidiques tout en se passant de l'utilisation des outils macroscopiques conventionnels.

c. Microfluidique et nombres adimensionnels

Pour prédire les comportements des liquides à petite échelle, on est amené à considérer des nombres adimensionnels [Squires and Quake 2005]. Sans être exhaustif, les phénomènes de viscosité, de capillarité, et de diffusion peuvent être appréhendés à travers les nombres de Reynolds, de Bond et de Péclet. La microfluidique se caractérise ainsi par un faible nombre de Reynolds Re_L ,

$$Re_L = \frac{\rho UL}{\mu}, \quad (1)$$

où ρ , μ , U , et L désignent respectivement la masse volumique, la viscosité dynamique, une vitesse et une longueur caractéristique de l'écoulement.

Le nombre de Reynolds est un nombre adimensionnel mesurant le rapport des effets inertiels et des effets visqueux. Suivant le cas de figure, faible nombre de Reynolds ou nombre de Reynolds élevés, on parlera d'écoulement laminaire (Fig. 3(a)) ou d'écoulement turbulent (Fig. 3 (b)). Dans le premier cas de figure, les lignes de courant sont parallèles les unes aux autres, dans le second, l'écoulement est chaotique et fait apparaître des structures fortement instationnaires. La microfluidique étant caractérisée par une échelle de longueur petite par définition, les écoulements mis en jeu sont donc très majoritairement laminaires ($Re_L < 1$). Ces écoulements sont régis par l'équation de Stokes, équation obtenue à partir de l'équation de Navier-Stokes, pour laquelle l'hypothèse d'un faible nombre de Reynolds permet de s'affranchir du terme non-linéaire. Par conséquent, les écoulements en microfluidique sont très reproductibles, ce qui représente un avantage indéniable pour le dimensionnement des laboratoires sur puce.



Fig. 3 (a) Écoulement laminaire dans un micro canal. (b) Jet turbulent en sortie de buse (image tirée de <http://en.wikipedia.org>).

A petite échelle, la capillarité peut prendre une importance considérable qui dépasse très souvent la contribution de la gravité (Fig. 4). Le ratio des deux grandeurs est représenté par un petit nombre de Bond Bo ,

$$Bo = \frac{\rho g L^2}{\gamma}, \quad (2)$$

avec g l'accélération de la gravité et γ la tension de surface.

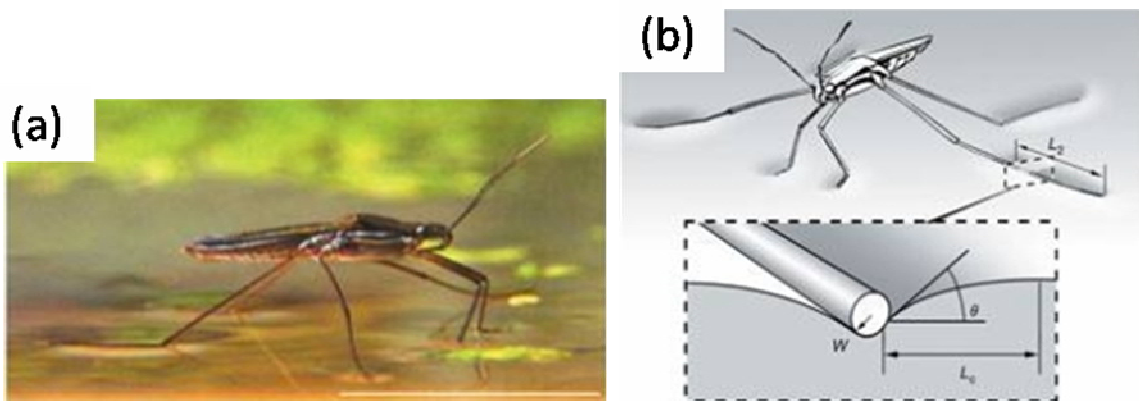


Fig. 4 (a) Le gerris peut marcher sur l'eau. (b) La tension de surface permet de compenser son poids, ceci grâce aux poils hydrophobes recouvrant ses pattes.

La capillarité étant un phénomène agissant aux interfaces, la maîtrise des phénomènes de contamination surfacique, d'adsorption de molécules sur le substrat et de mouillage représente une problématique centrale de la microfluidique.

Le nombre de Péclet Pe ,

$$Pe = \frac{\mathbf{u}L}{D_v}, \quad (3)$$

où D_v désigne la diffusivité du fluide, est un nombre adimensionnel utilisé dans les problèmes faisant intervenir du transport de masse. Il compare le transport de masse convectif, c'est à dire porté par le champ de vitesse de l'écoulement au transport de masse diffusif, phénomène corrélé au mouvement brownien des molécules. La problématique du transport de masse revêt un caractère particulièrement important dans les laboratoires sur puce lorsqu'il s'agit de mélanger deux réactifs en vue d'obtenir une réaction chimique ou biologique. En microfluidique, le nombre de Péclet est relativement faible ce qui signifie que le mélange est essentiellement assuré par la diffusion des espèces. Or la diffusion est un phénomène lent dont le temps caractéristique est donné par l'expression :

$$\tau_D = \frac{L^2}{D_v}. \quad (4)$$

Ceci explique que le mélange soit l'une des étapes les plus cruciales en microfluidique [Aref 1984; Stroock, Dertinger et al. 2002; Hessel, Lowe et al. 2005; Squires and Quake 2005]. Cette fonction doit être réalisée de manière efficace et rapide afin d'accélérer les réactions sur puce. La question que l'on peut se poser est alors de savoir si les écoulements en goutte activée par électromouillage peuvent favoriser le mélange. Ces aspects seront abordés par la suite dans le chapitre 5 partie B.

Ainsi, comme on le voit, des problématiques liées au changement d'échelle émergent et doivent être résolues ou contournées. Deux approches alternatives ou complémentaires sont alors possibles.

3. Microfluidique continue et discrète

La première, la plus ancienne et donc la plus développée met en jeu des écoulements dans des micro-canaux [Hung, Borovetz et al. 1977]. On parlera de microfluidique continue, par opposition à la deuxième approche mettant en jeu des volumes fluides discrets déplacés sous forme de gouttes individualisées, connue sous le terme de microfluidique digitale [Gong, Fan et al. 2004]. Il serait vain de tenter de définir les avantages et inconvénients de chacune des deux approches tant le nombre de solutions testées est important. On se contente alors d'illustrer ces deux grandes familles à travers l'exemple des *start-up* les plus connues ayant chacune développé sa propre stratégie en terme de microfluidique.

a. Microfluidique continue

La microfluidique dite *continue* consiste à déplacer les liquides dans des microcanaux de quelques nanomètres à quelques micromètres. Les systèmes les plus classiques utilisent des dispositifs extérieurs tels que des pousse-seringues ou des pompes pour imposer un débit ou une pression et actionner les liquides. Des efforts importants ont également été réalisés utilisant des dispositifs piézoélectriques [Vanlintel, Vandepol et al. 1988], électromagnétiques [Dario, Croce et al. 1996], ou encore thermo-pneumatiques [Jeong and Yang 2000] Les dispositifs sont complétés par des réservoirs et des vannes [Oh and Ahn 2006] permettant le stockage et blocage des fluides respectivement.

Un exemple de plateforme microfluidique utilisant les écoulements en micro-canaux est donné par la société *Fluidigm*. Cette société développe des circuits fluides en PDMS pouvant comporter plusieurs dizaines de microcanaux et plusieurs centaines de nanovannes. Le fluide est actionné par différence de pression. Un circuit de canaux secondaires surplombant le circuit fluide principal permet l'actionnement des vannes par déflexion des membranes lorsque le canal supérieur est mis sous pression (Fig. 5). Les puces sont étanches jusqu'à 300 kPa. Le point fort de cette plate forme microfluidique est de pouvoir intégrer sur la même puce des architectures très complexes et de les rendre fonctionnelles grâce à la technologie simple et néanmoins très fiable de vannes flexibles. Par ailleurs, le dispositif permet de partitionner un échantillon en plusieurs centaines de chambres pour autant d'analyses en parallèle et permet donc d'atteindre des débits de fonctionnement élevés. Le principal inconvénient est que l'actionnement pneumatique n'est pas intégré dans le dispositif ce qui rend le système difficilement transportable et complexifie la connectique fluidique du composant.

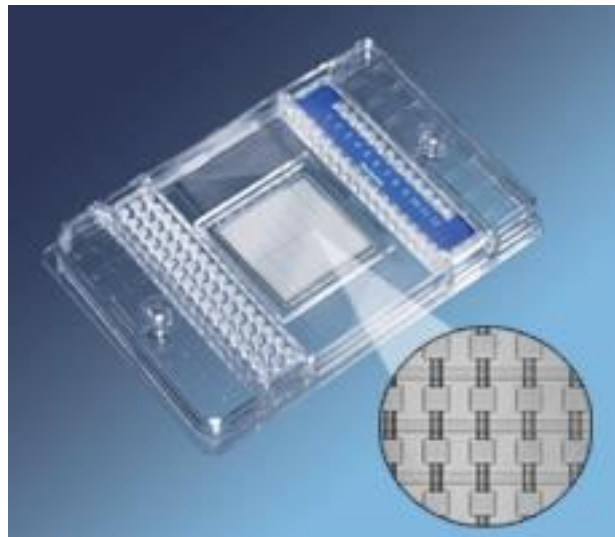


Fig. 5 Platerforme en PDMS développée par fluidigm (<http://www.fluidigm.com/>) et utilisant la microfluidique continue.

Dans le système précédent, des chambres servent à compartimenter le fluide et à définir des volumes discrets. Une autre méthode consiste à utiliser des gouttes. Dans ce cas, une jonction MFFT (Microfluidic Flow Focusing Device) (Fig. 6) dans laquelle une phase liquide principale est cisailée par un écoulement secondaire assure un parfait calibrage de gouttelettes y compris à très haut débit [Garstecki, Gitlin et al. 2004]. De plus, l'utilisation de surfactants permet de stabiliser les émulsions [Bibette and LealCalderon 1996] tandis que le

mélange au sein des gouttelettes est favorisé grâce à un brassage hydrodynamique induit par le déplacement dans la phase ambiante.

Raindrance technologies exploite les caractéristiques des écoulements diphasiques en microcanaux pour développer des puces jetables produisant plusieurs millions de nanogouttelettes par heure. La plateforme développée vise à faciliter des protocoles biomédicaux allant de la génomique à la détection de bio-marqueurs et ceci en fournissant un outil simple dans lequel un très grand nombre d'analyses peut être réalisé rapidement. En revanche, cette approche est pour l'instant mal adaptée aux protocoles complexes nécessitant plusieurs étapes de mélange ou impliquant des combinaisons de réaction complexes.

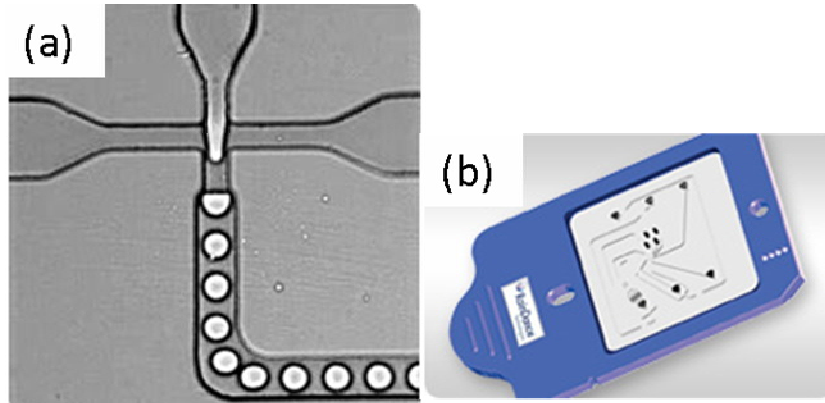


Fig. 6 (a) Écoulement diphasique créé par une jonction MFFT et utilisée dans les puces (b) développées par Raindrance Technologies (<http://www.raindancetechnologies.com/>).

b. Microfluidique digitale

Alors que pour les écoulements diphasiques en canaux, les gouttes sont déplacées par l'écoulement principal, la microfluidique digitale tente d'exploiter au maximum le phénomène de capillarité de manière à pouvoir manipuler individuellement chaque volume discret (de quelques nL à quelques μL) composé de réactifs et d'échantillons à analyser. Les gouttes sont séparées les unes des autres par un fluide ambiant qui peut être un gaz ou un liquide. En réalisant la coalescence d'une goutte de réactif avec une goutte d'échantillon, on crée un véritable microréacteur individualisé au sein duquel se produit la réaction biologique ou chimique [Fair 2009]. Tout comme pour la microfluidique continue, une très grande variété de principes physiques a été étudiée afin de permettre le déplacement des gouttes. Les ondes acoustiques, les forces électriques, les gradients thermiques [Yarin, Liu et al. 2002] et la microstructuration de surface asymétriques [Buguin, Talini et al. 2002] sont autant de mécanismes permettant d'acheminer les gouttes d'un point à l'autre de la puce. Afin de faciliter le déplacement de la goutte, des propriétés d'hydrophobicité voire de superhydrophobicité [Torkkeli, Saarilahti et al. 2001] doivent être recherchées ainsi que de faibles hystérésis de mouillage. En tant que phénomène permettant de contrôler la mouillabilité d'une goutte sur un substrat solide [Mugele, Klingner et al. 2005], l'électromouillage sur diélectrique, sur lequel nous reviendrons dans les paragraphes suivants, représente l'un des phénomènes les plus aboutis en microfluidique digitale.

Advanced Liquid Logic (Fig. 7) met au point des puces en plastique permettant de contrôler des volumes discrets de liquide de manière indépendante les uns des autres en utilisant le principe d'électromouillage. L'architecture des puces offre une grande flexibilité d'usage

comme celle d'agir facilement sur une goutte sans perturber les autres et permet donc une grande polyvalence sur la nature des protocoles à développer. L'utilisation exclusive de champs électriques comme principe d'actionnement permet de pousser davantage la miniaturisation et d'intégrer la puce dans un système portable complet. Par contre, la plateforme nécessite la maîtrise des phénomènes de mouillage et d'état de surface des puces et l'utilisation est pour l'instant limitée à quelques gouttes/mm² ce qui permet néanmoins d'intégrer des protocoles complets allant de la préparation d'échantillon à la détection.

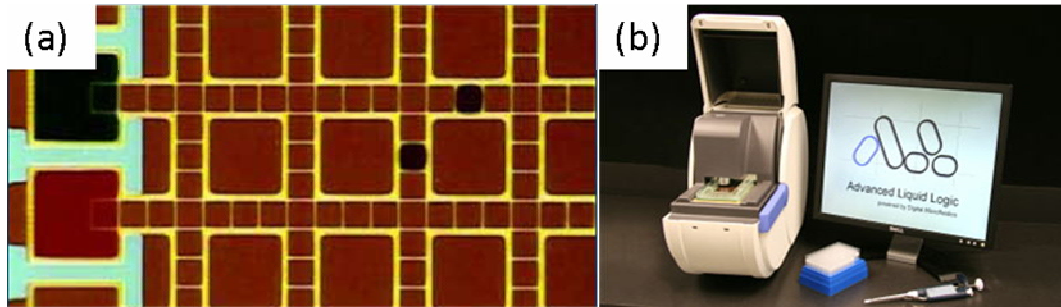


Fig. 7 (a) Plateforme digitale activée par électromouillage sur diélectrique et (b) dispositif portable développé par Advanced Liquid Logic (<http://www.liquid-logic.com/index.html>).

A travers les exemples cités, on constate que quelle que soit l'approche adoptée, continue ou digitale, des plateformes microfluidiques offrant la possibilité de réaliser des protocoles biologiques complets existent d'ores et déjà, le choix d'une approche plutôt qu'une autre dépend alors des finalités recherchées. L'environnement offert par le LETI offre un cadre idéal pour développer ces microsystèmes nécessitant des technologies de microgravure avancées.

La suite de ce travail se situe dans le cadre de la microfluidique digitale. Les gouttes sont manipulées individuellement à l'instar de la plateforme développée par Advanced Liquid Logic. Les propriétés de mouillage doivent alors être parfaitement maîtrisées. Nous présentons ici quelques phénomènes associés au mouillage d'une goutte sur un support.

c. Phénomènes associés à la microfluidique digitale

Loi de Laplace et tension de surface. La tension de surface est un phénomène lié à la présence d'une interface fluide, solide ou gazeuse. Elle résulte d'une anisotropie des forces de courtes portées (interaction de Van der Waals, force électrostatique...) à une interface. En effet, en volume, ces forces s'appliquent de manière isotrope sur les molécules si bien que leur résultante est nulle. Au contraire, à l'interface, l'isotropie est rompue et une résultante dirigée vers l'intérieur du fluide s'exerce (Fig. 8) appelée tension de surface et notée γ . La tension de surface s'exprime indifféremment en N/m ou en J/m². Les valeurs typiques sont de l'ordre de la dizaine de mN/m (pour une interface eau/air, $\gamma = 73$ mN/m).

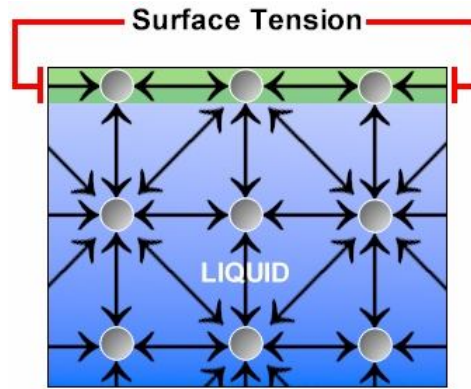


Fig. 8 Origine du phénomène de tension de surface.

La tension de surface est responsable de la forme adoptée par une goutte : elle équilibre la différence de pression Δp existant de part et d'autre d'une interface fluide suivant la relation de Laplace :

$$\Delta p = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = \gamma C, \quad (5)$$

où R_1 et R_2 sont les rayons de courbure principaux de l'interface et C sa courbure.

Lorsque l'on néglige les forces de gravité, la pression est constante dans la goutte ainsi que la courbure. La goutte adopte alors une forme sphérique.

Notion de longueur capillaire. La longueur capillaire L_c est une longueur caractéristique au delà de laquelle les forces de gravité prennent le dessus sur les forces capillaires. Son expression se déduit du nombre de Bond (2)) :

$$L_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}. \quad (6)$$

Pour des longueurs caractéristiques inférieures à L_c , les phénomènes capillaires sont prépondérants. A l'inverse lorsque les dimensions caractéristiques sont grandes devant L_c , c'est la gravité qui prend le dessus. Ainsi, une goutte d'eau dans l'air aura une forme sphérique dictée par la capillarité lorsque son diamètre reste inférieur à L_c , soit 2,7 mm. Au delà de ce diamètre, elle adoptera davantage une forme aplatie.

Mouillage d'une surface. Lorsque l'on pose une goutte sur un substrat, la goutte s'étale plus ou moins suivant la nature des trois milieux mis en jeu. L'étalement de la goutte est caractérisé par son angle de mouillage θ_0 qui est directement corrélé aux différentes tensions de surface intervenant dans le système. Chacune de ces tensions de surface tire sur la ligne triple pour réduire l'aire de l'interface qui lui est associée. A l'équilibre, le bilan des forces à la ligne triple s'écrit :

$$\cos(\theta_0) = \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{\gamma}, \quad (7)$$

expression mieux connue sous le nom de *relation de Young*, où θ_0 est également appelé angle de Young, et où γ , γ_1 , γ_2 désignent les tensions de surface entre le liquide et le milieu environnant, le liquide et le solide, et le solide et le milieu ambiant, respectivement. Ce dernier peut être un gaz comme l'air ou un liquide immiscible.

Hystérésis de l'angle de mouillage. En déposant la goutte avec une pipette, la goutte est censée adopter l'angle de mouillage prédit par la loi de Young. En réalité, l'angle de contact θ_0 peut prendre n'importe quelle valeur comprise entre l'angle d'avancée θ_a et l'angle de recul θ_r , θ_a étant généralement supérieur ou égal à θ_r . La différence entre l'angle d'avancée et l'angle de recul définit l'hystérésis de l'angle de contact. L'hystérésis de l'angle de contact se mesure avec une goutte posée sur un support inclinable. En relevant les valeurs d'angle d'avancée et de recul juste avant que la goutte ne se mette en mouvement, on peut estimer la différence ($\theta_a - \theta_r$) (Fig. 9).

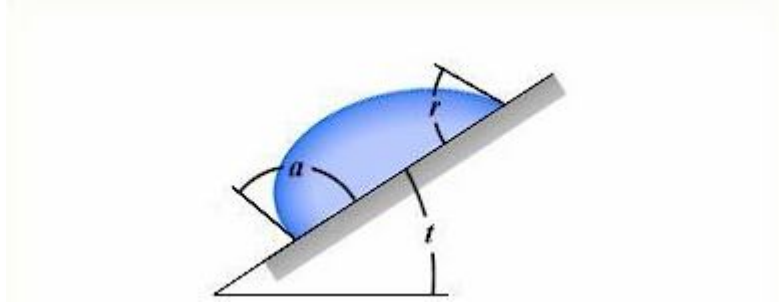


Fig. 9 Schéma représentant l'hystérésis d'angle de contact, les notations a et r désignent les angles d'avancée et de recul, respectivement.

L'hystérésis intervient dans l'expression de la force nécessaire pour déplacer une goutte mouillant un support. Celle-ci est donnée par l'expression suivante :

$$F = 2R\gamma \sin\left(\frac{\theta_a + \theta_r}{2}\right) (\cos(\theta_r - \theta_a)), \quad (8)$$

R étant le rayon de la goutte. Plus l'hystérésis de l'angle de contact est élevé et plus il est difficile de déplacer la goutte.

Partie B : de l'apport de l'actionnement électrique

Il peut être intéressant de coupler la mécanique des fluides à d'autres mécanismes physiques afin de multiplier le nombre de fonctions fluidiques réalisables à petite échelle.

Ainsi, la thermique, l'électromagnétisme, l'acoustique, la physico-chimie de surface ... sont autant de disciplines physiques concernées permettant d'élargir le champ des possibilités offertes. Parmi celles-ci, l'utilisation des champs électriques en tant que principe d'actionnement des fluides est probablement le mécanisme qui offre le plus grand nombre de solutions fiables et intégrables dans un laboratoire sur puce.

Dans cette partie nous verrons en quoi l'électrostatique couplée à l'hydrodynamique à petite échelle permet d'apporter des solutions élégantes. L'électrohydrodynamique (EHD) est la discipline scientifique fondée sur le couplage entre la mécanique des fluides et l'électrostatique. En toute rigueur, elle ne concerne que les phénomènes induisant un écoulement induit par champ électrique. Partant des équations de Maxwell, les équations de l'électrostatique sont dans un premier temps établies. La notation complexe des grandeurs électriques est introduite et les conditions aux limites vérifiées par le champ électrostatique sont détaillées. Le couplage électrohydrodynamique est ensuite considéré. Pour des constantes diélectriques homogènes en volume, ce couplage se traduit exclusivement aux interfaces avec l'action de contraintes orientées suivant les directions normale ou tangentes. Des exemples concrets d'applications basées sur ce couplage sont donnés.

1. De l'électromagnétisme à l'électrostatique

a. Les équations de Maxwell

Les équations de Maxwell permettent de traduire sous forme mathématique les lois qui régissent le phénomène d'électromagnétisme. Elles peuvent se résumer de la manière suivante :

L'induction magnétique \mathbf{B} est à flux conservatif :

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0. \quad (9)$$

Le champ électrique \mathbf{E} est relié à l'induction magnétique par la loi de Lenz :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}. \quad (10)$$

La densité volumique de charge libre q dans un milieu est donnée par la loi de Gauss :

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = q, \quad (11)$$

où $\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E}$, est le vecteur déplacement.

Le champ magnétique $\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_{mag}}$, où μ_{mag} désigne la perméabilité magnétique du milieu, et la densité de courant électrique \mathbf{j} sont reliés par la loi d'Ampère :

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}. \quad (12)$$

L'utilisation des phénomènes magnétiques permet parfois d'apporter des solutions élégantes à certains problèmes [Bau, Zhong et al. 2001] mais la création de champs magnétiques intenses requiert une technologie lourde représentant le principal handicap de cette approche. Une solution beaucoup plus répandue consiste à exploiter uniquement les phénomènes électrostatiques.

b. L'approximation de l'électroquasistatique

L'approximation de l'électroquasistatique consiste à supposer une faible interaction entre le champ électrique et le champ magnétique. Le découplage entre ces deux phénomènes est valable lorsque dans un milieu conducteur l'épaisseur de peau magnétique δ_{mag} est grande par rapport aux dimensions caractéristiques du milieu. Pour un milieu diélectrique, la longueur caractéristique à prendre en compte est la longueur d'onde électromagnétique ξ_{mag} . Epaisseur de peau magnétique et longueur d'onde sont données respectivement par les relations :

$$\delta_{mag} = \sqrt{\frac{1}{\pi f \mu_{mag} \sigma}}, \quad (13)$$

$$\xi_{mag} = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_r} 2 \pi f}, \quad (14)$$

où f , μ_{mag} , σ , ϵ_r et c désignent respectivement la fréquence du signal électrique, la perméabilité magnétique, la conductivité électrique du milieu conducteur, la permittivité relative du milieu et la vitesse de la célérité.

En pratique, dans les conditions qui nous intéressent, le système est presque toujours composé d'un liquide conducteur (une solution aqueuse) entouré d'un isolant (air, huile, polymère, verre...) qui limite le courant électrique injecté dans le système tandis que les fréquences électriques utilisées (de l'ordre du kHz) sont suffisamment faibles pour négliger les effets magnétiques comme le montre le tableau 1. Les applications numériques sont réalisées avec les propriétés électriques d'une solution tampon de PBS (Phosphate Buffered Saline) se comportant comme un milieu conducteur à basse fréquence et un milieu diélectrique à haute fréquence.

Fréquence (Hz)	δ_{mag} ($\sigma = 1,6S/m$)	ξ_{mag} ($\epsilon_r = 78,5$)
3 kHz	7,2 m	1,8 km
1 GHz	1 cm	5,4 mm

Tab. 1 Calcul des épaisseurs de peau magnétique et longueurs d'onde électromagnétique du PBS.

c. Les équations de l'électrostatique

Dans le cadre de l'approximation de l'électroquasistatique, l'équation (10) se réécrit :

$$\nabla \times \mathbf{E} = 0. \quad (15)$$

Le champ électrique devient alors irrotationnel ce qui permet d'introduire le potentiel électrique scalaire V tel que :

$$\mathbf{E} = -\nabla V. \quad (16)$$

Par ailleurs, dans chaque phase, le bilan de charge s'écrit :

$$\frac{\partial q}{\partial t} + \nabla \cdot (q\mathbf{u} + \mathbf{j}) = 0, \quad (17)$$

où \mathbf{u} est la vitesse du fluide. Dans le cas d'un liquide conducteur homogène ayant peu d'impuretés, la densité de courant \mathbf{j} suit la loi d'Ohm :

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}. \quad (18)$$

L'équation (17) fait apparaître de gauche à droite trois termes :

Le terme instationnaire prenant en compte la variation temporelle de la charge volumique.

Le terme de courants de convection associés au transport des ions par l'écoulement du fluide.

Et enfin le troisième terme de courant de conduction créée par la mobilité des charges dans le volume sous l'effet du champ électrique.

Le nombre de Reynolds électrique Re_{el} permet de mesurer l'importance relative des contributions de ces deux courants. Son expression est donnée par la relation :

$$Re_{el} = \frac{\epsilon \mathbf{u}}{\sigma L}, \quad (19)$$

où L est une longueur caractéristique système.

Pour un liquide conducteur comme l'eau, le nombre de Reynolds électrique est très petit et les courants de convection sont alors négligeables par rapport aux courants de conduction. Il en résulte que le calcul du champ électrostatique n'est pas corrélé au calcul du champ de vitesse, les problèmes d'électrostatique et de mécanique des fluides pouvant alors être résolus séparément, en déterminant les forces électrostatiques dans un premier temps puis en résolvant le problème de mécanique des fluides par la suite.

Compte tenu des équations (11) et (18), dans le cadre de l'approximation des faibles nombres de Reynolds électriques, l'équation (17) se réécrit :

$$\frac{dq}{dt} + \frac{\sigma}{\epsilon} q = 0, \quad (20)$$

La charge en volume suit donc une équation différentielle du premier ordre dont la constante de temps τ , appelée temps de relaxation des charges, ne dépend que des propriétés électriques du fluide et est égale à :

$$\tau = \frac{\epsilon}{\sigma}. \quad (21)$$

Lorsque la période du signal électrique T est grande devant τ , la charge électrique volumique q devient instantanément nulle. On parle alors d'Approximation des Etats Quasi-Stationnaires (AEQS). On retiendra que pour un conducteur parfait, la densité de charge volumique est nulle (Tab. 2)

Fluide	Huile silicone	Eau Ultra-Pure	PBS
ϵ_r	2	78,5	78,5
σ (S/m)	10^{-10}	$5,5 \cdot 10^{-6}$	1,6
τ	0,17	0,13 ms	0,4 ns

Tab. 2 Calcul des temps de relaxation dans différents milieux.

d. Mise en équation du champ électrique

En combinant la loi de Gauss et l'équation (16), on trouve que dans un milieu, le potentiel électrique obéit à la relation :

$$\nabla \cdot (\epsilon \nabla V) = 0, \quad (22)$$

qui se réécrit en considérant le milieu homogène :

$$\Delta V = 0. \quad (23)$$

Le potentiel électrique dans un milieu obéit donc à l'équation de Laplace.

e. Champs électriques alternatifs et grandeurs complexes

Lorsque l'on impose un champ électrique alternatif, il est commode d'introduire des notations complexes de manière à ce que le champ électrique réel et le potentiel soient donnés par les expressions :

$$\mathbf{E} = \text{Re}(\mathbf{E}^*), \quad (24)$$

$$V = \text{Re}(V^*). \quad (25)$$

Les symboles \mathbf{E}^* et V^* désignent le champ électrique complexe et le potentiel électrique complexe respectivement. La grandeur complexe intègre l'amplitude de la grandeur réelle, son évolution temporelle et l'éventuel déphasage par rapport au signal électrique imposé. Les dérivées temporelles des grandeurs complexes s'expriment alors simplement de la manière suivante :

$$\frac{\partial \mathbf{E}^*}{\partial t} = j\omega \mathbf{E}^*, \quad (26)$$

$$\frac{\partial V^*}{\partial t} = j\omega V^*. \quad (27)$$

La relation liant le champ électrique et le potentiel électrique se réécrit :

$$\mathbf{E}^* = -\nabla V^*. \quad (28)$$

En introduisant la conductivité électrique complexe σ^* définie comme :

$$\sigma^* = \sigma + j\varepsilon\omega, \quad (29)$$

avec $j^2 = -1$, on exprime simplement la densité de courant complexe \mathbf{j}^* :

$$\mathbf{j}^* = \sigma^* \mathbf{E}^*. \quad (30)$$

La densité de courant complexe regroupe sous un seul terme les contributions des courants ohmiques donnés par l'équation (18) et des courants de déplacements créés par la variation temporelle du vecteur déplacement \mathbf{D} .

A partir de l'équation (12), et compte tenu des relations (26) et (30), on peut écrire :

$$\nabla \cdot \mathbf{j}^* = 0, \quad (31)$$

et donc,

$$\nabla \cdot (\sigma^* \nabla V^*) = 0. \quad (32)$$

Au final, on trouve que le potentiel électrique complexe satisfait également l'équation de Laplace :

$$\Delta V^* = 0. \quad (33)$$

f. Conditions aux limites électrostatiques

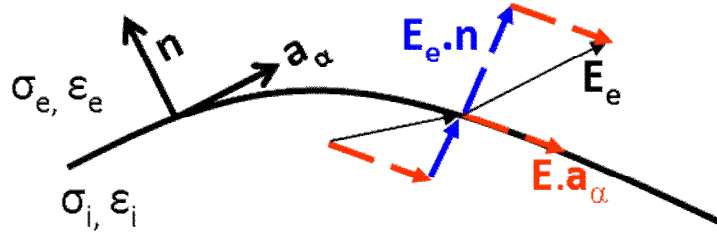


Fig. 10 Représentation d'une interface entre deux milieux. La composante normale du champ électrique est discontinue à l'interface tandis que la composante tangentielle est continue.

D'après l'équation (15), à l'interface entre deux milieux i et e , les composantes tangentielles du champ électrique ainsi que le potentiel électrique sont continus :

$$\|\mathbf{a}_\alpha \cdot \mathbf{E}\| = 0, \quad (34)$$

$$V^e = V^i, \quad (35)$$

le saut interfacial de la grandeur A étant défini par :

$$\|A\| = A^e - A^i. \quad (36)$$

De plus, l'équation (31) implique que la composante normale de la densité de courant se conserve à travers l'interface :

$$\|\mathbf{n} \cdot \mathbf{j}^*\| = \mathbf{n} \cdot (\mathbf{j}^{e*} - \mathbf{j}^{i*}) = 0. \quad (37)$$

Ce qui se réécrit :

$$\sigma^{i*} \mathbf{E}^{i*} \cdot \mathbf{n} = \sigma^{e*} \mathbf{E}^{e*} \cdot \mathbf{n}. \quad (38)$$

A partir de cette équation, on voit clairement qu'à l'interface entre un milieu conducteur et un milieu isolant, le champ électrique dans le conducteur sera quasiment nul tandis que pour compenser l'écart de conductivité électrique, il atteindra des valeurs élevées dans le milieu diélectrique.

Enfin, la loi de Gauss écrite à l'interface permet de calculer la charge électrique surfacique q_s accumulée. Celle-ci fait intervenir les composantes normales du vecteur déplacement et s'écrit à l'interface :

$$\|\mathbf{n} \cdot \mathbf{D}\| = \mathbf{n} \cdot (\epsilon^e \mathbf{E}^e - \epsilon^i \mathbf{E}^i) = q_s. \quad (39)$$

Dans le cas où un milieu conducteur est entouré d'un milieu diélectrique, le vecteur déplacement étant quasiment nul dans le liquide conducteur, la charge électrique de surface dépend alors uniquement du vecteur déplacement dans le milieu diélectrique.

2. Couplage ElectroHydrodynamique

L'équation régissant la dynamique d'un fluide incompressible en présence de champ électrique s'écrit :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (40)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{u} + \rho \mathbf{g} + \mathbf{F}_e, \quad (41)$$

où ρ désigne la masse volumique, p la pression, η la viscosité dynamique et \mathbf{g} l'accélération de la gravité.

La première équation traduit l'incompressibilité du fluide, hypothèse que nous ferons systématiquement par la suite. Quant à la deuxième équation, il s'agit de l'équation de Navier Stokes à laquelle vient s'ajouter un terme de force supplémentaire \mathbf{F}_e représentant l'action des forces électriques en volume.

Ce terme est connu sous le nom de densité volumique de force de Korteweg-Helmholtz et s'exprime par la relation :

$$\mathbf{F}_e = q\mathbf{E} - \frac{1}{2} \mathbf{E}^2 \nabla \varepsilon + \nabla \left[\frac{1}{2} \mathbf{E}^2 \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \rho \right]. \quad (42)$$

Les différents termes de cette formule se réfèrent à des phénomènes distincts qui peuvent apparaître indépendamment selon les conditions expérimentales.

Le premier terme de la force de Korteweg-Helmholtz correspond à la force coulombique qui s'applique sur une parcelle fluide chargée et intervient principalement lorsque des charges ioniques sont injectées dans le volume fluide.

Le deuxième terme se rapporte à la diélectrophorèse et apparaît lorsqu'une non-uniformité de permittivité électrique est induite dans le fluide.

Enfin, le dernier terme dit d'électrostriction fait intervenir la dépendance de la permittivité électrique à la masse volumique.

En dehors de ces trois situations particulières pour lesquelles le terme de Korteweg Helmholtz est non nul, le couplage EHD est uniquement localisé aux interfaces. Cette propriété rend l'actionnement de fluide par l'électrostatique particulièrement intéressant car à petite échelle, le ratio surface sur volume est important, et les phénomènes surfaciques jouent donc un rôle de premier plan.

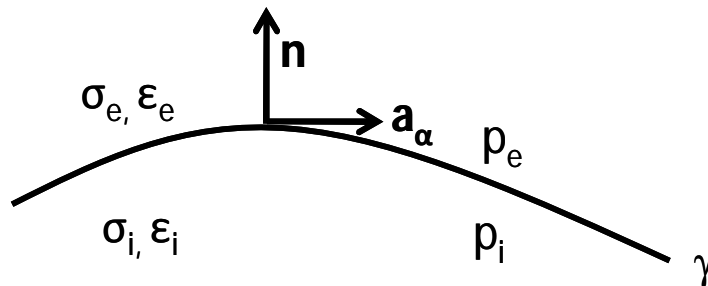


Fig. 11 Représentation d'une interface fluide.

A la surface du liquide, le bilan de quantité de mouvement normal et tangential est donné par les équations :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_h \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| + \left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| = \gamma \nabla \cdot \mathbf{n}, \quad (43)$$

$$2 \left\| (\eta \overline{\mathbf{D}_h} \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{a}_\alpha \right\| - \left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{a}_\alpha} \right\| = (\nabla_s \gamma) \cdot \mathbf{a}_\alpha, \quad (44)$$

où $\gamma \nabla \cdot \mathbf{n}$ et $\nabla_s \gamma$ désignent la pression capillaire, et l'effet Marangoni causé par un gradient de tension de surface, et ∇_s désigne le gradient surfacique.

Dans les équations (43) et (44), $\overline{\mathbf{T}_h}$ et $\overline{\mathbf{D}_h}$ désignent le tenseur des contraintes hydrodynamiques et la partie symétrique du gradient de la vitesse \mathbf{u} , respectivement :

$$\overline{\mathbf{T}_h} = -p \overline{\mathbf{I}} + 2\eta \overline{\mathbf{D}_h}, \quad (45)$$

$$\overline{\mathbf{D}_h} = \frac{1}{2} (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^t). \quad (46)$$

Enfin, $\overline{\mathbf{T}_e}$ est le tenseur des contraintes électriques de Maxwell :

$$\overline{\mathbf{T}_e} = -\frac{1}{2} \varepsilon (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) \overline{\mathbf{I}} + \varepsilon \mathbf{E} \otimes \mathbf{E}, \quad (47)$$

où $\mathbf{E} \otimes \mathbf{E}$ est le tenseur construit à partir du champ électrique \mathbf{E} dont les composantes sont définies par :

$$(\mathbf{E} \otimes \mathbf{E})_{ij} = \mathbf{E}_i \cdot \mathbf{E}_j. \quad (48)$$

Compte tenu de la loi de Gauss à l'interface (équation (39)), le saut de contrainte électrique tangentielle à l'interface se réécrit :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{a}_\alpha} \right\| = q_s \mathbf{E} \cdot \mathbf{a}_\alpha, \quad (49)$$

tandis que le saut de contrainte électrique normale est :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| = \frac{1}{2} \varepsilon^e (\mathbf{E}_n^{e2} - \mathbf{E}_{a_\alpha}^{e2}) - \frac{1}{2} \varepsilon^i (\mathbf{E}_n^{i2} - \mathbf{E}_{a_\alpha}^{i2}). \quad (50)$$

Dans le cas où le milieu i est un conducteur électrique parfait, le champ électrique y est nul et est orienté, à l'interface, uniquement suivant la normale ; l'équation (50) s'écrit simplement :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| = \frac{1}{2} \varepsilon^e \mathbf{E}^{e2}. \quad (51)$$

Les relations (49), (50) et (51) sont impliquées dans différents phénomènes qui sont ici illustrés.

3. Illustration du bilan normal de quantité de mouvement

L'expression du bilan normal de quantité de mouvement donne naissance à deux phénomènes EHD exploitables pour l'actionnement des fluides [Zeng and Korsmeyer 2004] et qui se distinguent l'un et l'autre par la nature électrique de l'interface fluide considérée : la

diélectrophorèse liquide (*L-DEP*) qui concerne les liquides isolants (équation (50)) et l'électromouillage qui concerne les liquides conducteurs (équation (51)).

a. Diélectrophorèse liquide

La diélectrophorèse liquide permet de déplacer un liquide isolant dans un milieu isolant. Le saut de permittivité électrique entre les deux milieux suffit à créer une contrainte électrique normale à l'interface. Les premiers travaux sur le sujet ont été initiés par Pellat (1895) et consistaient à modifier la hauteur d'une colonne d'huile entourée de deux électrodes. La plupart des liquides biologiques cependant sont des milieux conducteurs et afin d'exploiter ce phénomène pour les laboratoires sur puces, Jones (2002) adapte l'expérience en utilisant un liquide conducteur et des électrodes recouvertes d'une couche d'isolation pour éviter l'électrolyse du liquide. Sous l'effet d'un signal électrique alternatif à haute fréquence, le liquide se comporte alors comme un milieu isolant et les résultats de l'expérience sont similaires à ceux obtenus auparavant par Pellat avec de l'huile. La génération de nanogouttelettes et le déplacement de liquides sont alors réalisables suivant ce principe [Jones, Gunji et al. 2001].

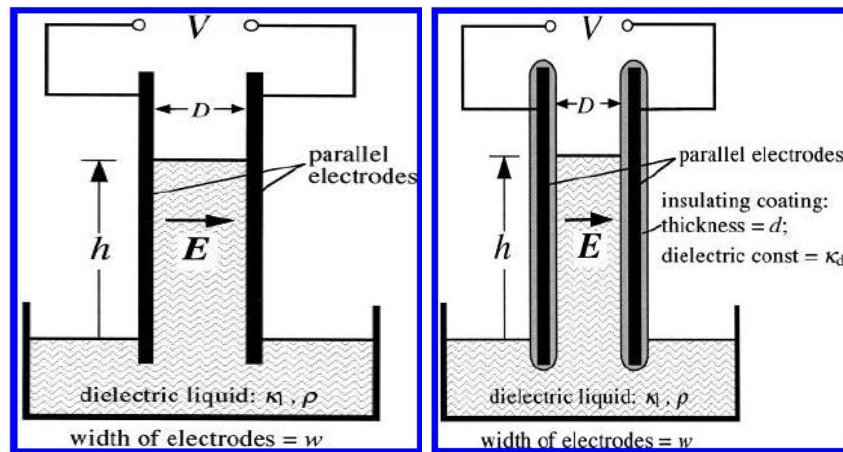


Fig. 12 Illustration de la diélectrophorèse liquide : expérience de Pellat (a gauche) et expérience de Pellat adaptée par Jones (a droite) ; figure tirée de Jones (2002).

b. Electromouillage sur diélectrique (EWOD)

L'électromouillage sur diélectrique est un phénomène permettant de modifier de manière réversible l'angle de mouillage d'une solution conductrice posée sur un support hydrophobe [Mugele, Klingner et al. 2005]. Sous l'effet du champ électrique, des charges électriques s'accumulent à l'interface de la goutte. Celle-ci, soumise à une contrainte électrique normale, s'étale sur le substrat.

Pour trouver l'origine de ce phénomène il faut remonter aux travaux fondateurs de Lippmann sur l'électrocapillarité [Lippmann 1875] ainsi qu'aux expériences de Froumkine réalisées quelques temps après consistant à étudier l'étalement d'une bulle d'air entourée d'une solution d'électrolyte, en contact avec une électrode [Froumkine 1936]. La modification d'angle de contact est alors limitée par l'électrolyse de la solution aqueuse. Pour éviter cela, Berge (1993) insère une couche isolante de polymère entre l'électrode et le liquide, permettant ainsi d'appliquer des potentiels électriques plus importants et donc d'accroître l'étalement de la goutte (Fig. 13).

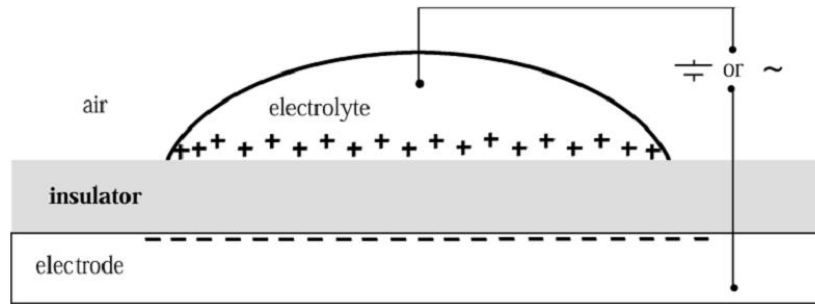


Fig. 13 Illustration de l'électromouillage sur diélectrique ; tiré de [Quilliet and Berge 2001].

4. Illustration du bilan tangential de quantité de mouvement

L'actionnement de liquides peut également se faire à travers l'application de contraintes électriques tangentielles (équation (49)). Ceci est illustré par l'expérience de Taylor-Melcher (1969). L'EHD de type Taylor-Melcher est un phénomène surfacique permettant de mettre en mouvement un liquide isolant dans un milieu à partir de l'interface fluide. L'expérience mise en œuvre est la suivante : de part et d'autre d'une cuve, sont disposées deux électrodes. L'électrode de droite est portée au potentiel V_0 tandis que l'électrode de gauche est reliée à la masse. La cuve est remplie à hauteur des électrodes latérales, celles-ci créent donc un champ électrique horizontal dans le liquide. L'électrode reliée à la masse est en contact avec une électrode supérieure inclinée par rapport à l'interface. La présence de cette électrode permet alors de créer un champ électrique vertical dans l'air. L'interface est alors le siège d'une discontinuité du champ électrique qui se traduit par une accumulation de charge électrique à la surface (équation (39)). La charge surfacique soumise au champ électrique tangentiel crée une contrainte hydrodynamique qui met en mouvement le fluide.

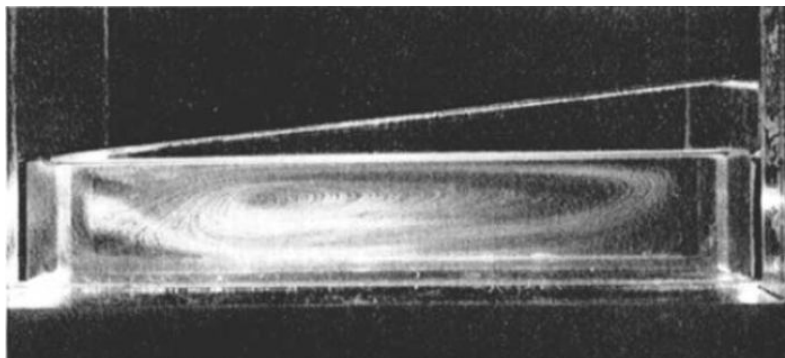


Fig. 14 Expérience de Taylor et Melcher mettant en jeu des contraintes électriques tangentielles à la surface du liquide. Tiré de [Melcher and Taylor 1969].

Ainsi, nous avons vu que l'application de champs électriques dans des milieux liquides donne naissance à des phénomènes pour lesquels les interfaces jouent un rôle déterminant. Des contraintes normales ou tangentielles peuvent apparaître suivant la configuration et la nature de l'interface.

Nous nous concentrons par la suite sur le phénomène d'électromouillage qui est au centre de notre travail de thèse. Le bilan tangential sera étudié en détail dans le chapitre 3 tandis que des phénomènes autres que la diélectrophorèse liquide à haute fréquence seront évoqués.

Partie C : Electromouillage sur diélectrique, principes et applications

*P*armi les différents mécanismes physiques évoqués jusqu'ici, rares sont ceux qui permettent de réaliser une panoplie de fonctions fluidiques élémentaires. L'électromouillage sur diélectrique fait partie de ces mécanismes permettant de dispenser un liquide avec un volume très précis, de le déplacer sous forme de gouttes, de le séparer ou de le mélanger avec un autre échantillon liquide. Nous détaillons dans un premier temps la modélisation de l'électromouillage par une approche énergétique. Le modèle énergétique est suffisant pour comprendre le comportement macroscopique d'une goutte activée par électromouillage tel que son étalement ou son déplacement. La palette des fonctions réalisables et telles que décrites par l'approche énergétique est ici présentée.

1. Modélisation de l'EWOD par l'approche énergétique

a. Le modèle énergétique

Le phénomène d'électromouillage a tout d'abord été modélisé par une approche que nous appellerons par la suite pour simplifier 'approche énergétique' car elle fait intervenir le calcul de l'énergie électrostatique stockée dans les couches diélectriques. Considérons le système formé par une goutte en configuration à électrode plongeante (Fig. 15) et faisons l'hypothèse que le liquide formant la goutte est un conducteur électrique parfait.

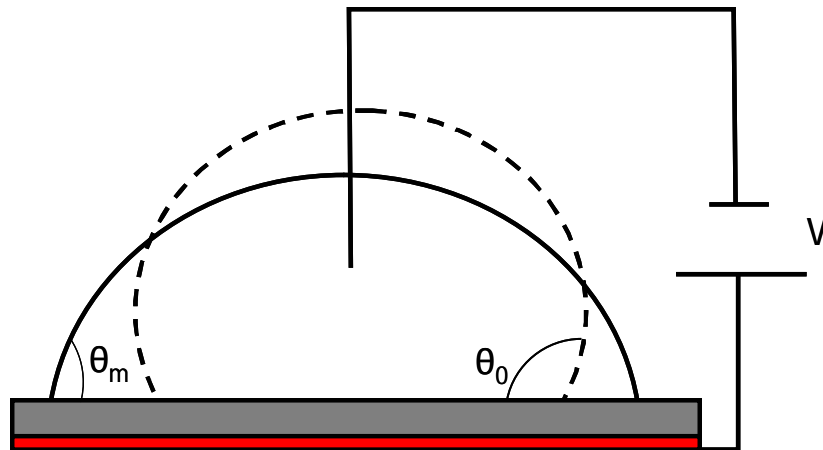


Fig. 15 Schéma de principe de l'électromouillage sur diélectrique en configuration à électrode plongeante.

Lorsque la tension électrique est nulle, l'angle de mouillage de la goutte est donné par l'expression de Young,

$$\cos(\theta_0) = \frac{\gamma_2 - \gamma_1}{\gamma}, \quad (52)$$

où γ , γ_1 , γ_2 désignent, respectivement, les tensions de surface entre le liquide et le milieu environnant, le liquide et le solide, et le solide et le milieu ambiant.

En appliquant une différence de potentiel électrique V , des charges de surface vont apparaître à l'interface liquide-solide suivant la loi de Lippmann :

$$\frac{\partial \gamma_1}{\partial V} = -q_s = -CV, \quad (53)$$

où q_s est la densité surfacique de charge électrique, V , la différence de potentiel appliquée aux électrodes et C , la capacité électrique par unité de surface formée par la couche diélectrique. Sa valeur est,

$$C = \frac{\epsilon}{d}, \quad (54)$$

d étant l'épaisseur du diélectrique.

De la loi de Lippmann, on tire :

$$\gamma_1(V) = \gamma_1 - \frac{CV^2}{2}. \quad (55)$$

L'équation de Young s'écrit lorsque la différence de potentiel V est appliquée :

$$\gamma_2 = \gamma_1 - \frac{CV^2}{2} + \gamma \cos(\theta_m). \quad (56)$$

On en déduit l'équation de Lippmann-Young ou équation de Berge :

$$\cos(\theta_m) = \cos(\theta_0) + \frac{CV^2}{2\gamma}. \quad (57)$$

Le cosinus de l'angle de mouillage suit une loi proportionnelle au carré de la tension électrique appliquée. En pratique toutefois, cette loi est mise à défaut pour des valeurs de tensions élevées pour lesquelles une saturation de l'angle de contact est observée, phénomène sur lequel nous reviendrons par la suite.

L'équation de Berge fait intervenir le nombre d'électromouillage :

$$N_{EM} = \frac{\varepsilon V^2}{2d\gamma}, \quad (58)$$

nombre adimensionnel représentant le rapport entre la tension de surface γ et la tension effective d'électromouillage T_{EM} :

$$T_{EM} = \frac{CV^2}{2} = \frac{\varepsilon V^2}{2d}. \quad (59)$$

La compétition entre ces deux grandeurs détermine la propension de la goutte à s'étaler plus ou moins sous l'effet de la différence de potentiel.

L'observation de la goutte à différents potentiels électriques montre une évolution de l'angle de contact en même temps qu'un étalement de la goutte. Dans le régime capillaire, les deux grandeurs sont liées par le caractère sphérique de la goutte. En imposant un potentiel électrique, les charges électriques provoquent un étalement de la goutte et donc une modification de l'angle de contact. Cet étalement peut s'expliquer en considérant l'énergie du système E_s ,

$$E_s = \gamma S + \sum_1^2 \gamma_i S_i - \frac{CV^2}{2} S_1, \quad (60)$$

avec S , S_1 et S_2 désignant, respectivement, l'interface entre la goutte et le milieu ambiant, l'interface entre la goutte et le solide et l'interface entre le milieu ambiant et le solide.

Le signe négatif devant le terme d'énergie électrostatique provient du fait que le potentiel électrique est favorable à la création de surface solide mouillée.

L'équation (60) se réécrit :

$$E_s = \gamma S + \gamma_2 S_2 + (\gamma_1 - \frac{CV^2}{2}) S_1. \quad (61)$$

Ainsi la minimisation de l'énergie du système ne peut se faire qu'en augmentant la surface mouillée par la goutte. On observe alors un étalement de la goutte dès l'application du potentiel électrique.

b. Configuration à électrodes coplanaires

Lorsque l'on dispose côte à côte deux électrodes, on observe deux comportements différents suivant le potentiel électrique de la goutte. Dans le cas (a), une caténaire reliée à la masse est en contact direct avec la goutte, imposant ainsi un potentiel électrique nul dans la goutte. Dans le cas (b), la goutte n'est en contact avec aucune électrode, son potentiel est flottant. Les cas (a) et (b) sont illustrés ci-dessous (Fig. 16) :

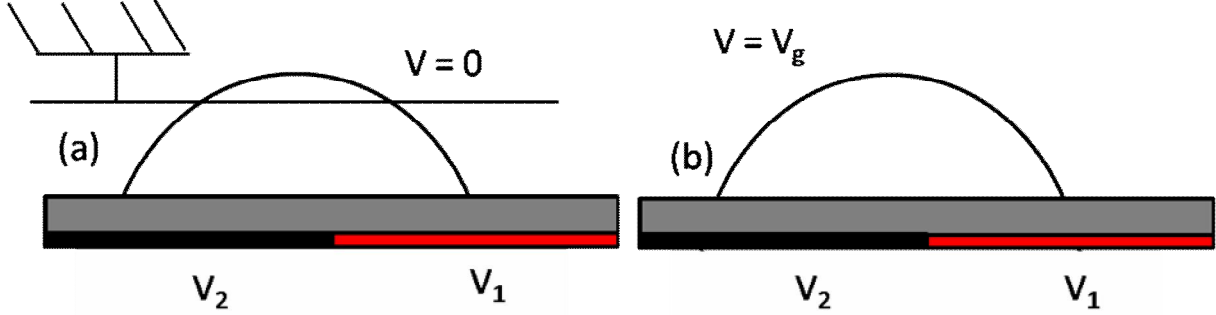


Fig. 16 Configuration à électrodes coplanaires (a) Avec une contre-électrode caténaire. (b) Sans caténaire.

Lorsqu'une différence de potentiel électrique $V_1 - V_2$ est appliquée aux deux électrodes coplanaires, avec $V_1 > V_2$, l'observation montre que dans le cas (a) la goutte recouvre entièrement l'électrode 1 tandis que dans le cas (b), la goutte chevauche chacune des deux électrodes. Des considérations énergétiques permettent de comprendre les deux régimes d'équilibre observés. L'énergie électrique stockée dans chaque configuration s'écrit :

$$E_a = -\frac{C_1 V_1^2}{2} - \frac{C_2 V_2^2}{2}, \quad (62)$$

$$E_b = -\frac{C_1 (V_1 - V_g)^2}{2} - \frac{C_2 (V_2 - V_g)^2}{2}. \quad (63)$$

Soit S_g la surface mouillante totale de la goutte et S_{g1} et S_{g2} les surfaces recouvrant chacune des deux électrodes. On a :

$$S_g = S_{g1} + S_{g2}, \quad (64)$$

On introduit alors le rapport de surface x défini par :

$$x = \frac{S_{g1}}{S_g}, \quad (65)$$

et l'énergie électrique dans chacune des configurations se réécrit :

$$E_a = -\frac{S_g \varepsilon}{d} \left(x \frac{V_1^2}{2} + (1-x) \frac{V_2^2}{2} \right), \quad (66)$$

$$E_b = -\frac{S_g \varepsilon}{d} \left(x \frac{(V_1 - V_g)^2}{2} + (1-x) \frac{(V_2 - V_g)^2}{2} \right). \quad (67)$$

Par ailleurs, le potentiel électrique de la goutte dans la configuration (b) est donné par la relation :

$$V_g = \frac{C_1 V_1 + C_2 V_2}{C_1 + C_2}, \quad (68)$$

$$V_g = xV_1 + (1-x)V_2. \quad (69)$$

L'énergie électrique se réécrit alors :

$$E_b = -\frac{S_g \varepsilon}{2d} (xV_1^2 + (1-x)V_2^2 - (xV_1 + (1-x)V_2)^2). \quad (70)$$

A partir des équations (66) et (70), on déduit que dans la configuration (a), l'énergie est minimale lorsque x vaut 1, c'est à dire lorsque la goutte recouvre entièrement l'électrode 1. Dans la configuration (b) au contraire, la minimisation de l'énergie est obtenue lorsque $x = 0,5$, autrement dit lorsque la goutte est à cheval sur les deux électrodes. Le potentiel électrique de la goutte vaut :

$$V_g = \frac{V_1 - V_2}{2}. \quad (71)$$

Ainsi, lorsque l'on applique une différence de potentiel égale à 90 Volts, la goutte adopte un potentiel électrique de 45 Volts. Ceci a une incidence sur l'électromouillage de la goutte. La formule de Berge se réécrit alors pour une différence de potentiel V :

$$\cos(\theta_m) = \cos(\theta_0) + \frac{C}{2\gamma} \left(\frac{V}{2}\right)^2 = \cos(\theta_0) + \frac{CV^2}{8\gamma}. \quad (72)$$

L'angle de mouillage obtenu pour une différence de potentiel donnée dans cette configuration correspond à celui que l'on obtiendrait avec un potentiel deux fois moins grand dans la configuration à électrode plongeante (équation (57)). On comprend alors que la configuration coplanaire sans caténaire possède l'avantage de minimiser l'aspect intrusif d'une contre-électrode plongeante mais au prix d'une tension effective d'électromouillage réduite d'un facteur 4.

2. Applications en optique

a. Les lentilles à focales variables

Le principe de fonctionnement des lentilles à focale variable repose sur l'électromouillage et est développé par la société *Varioptics* : la courbure de l'interface formée par deux fluides immiscibles est contrôlée de manière électrique, ce qui modifie le chemin optique des rayons lumineux et permet de régler ainsi la distance focale du système sans avoir recours à des déplacements de composants optiques tels que des lentilles.

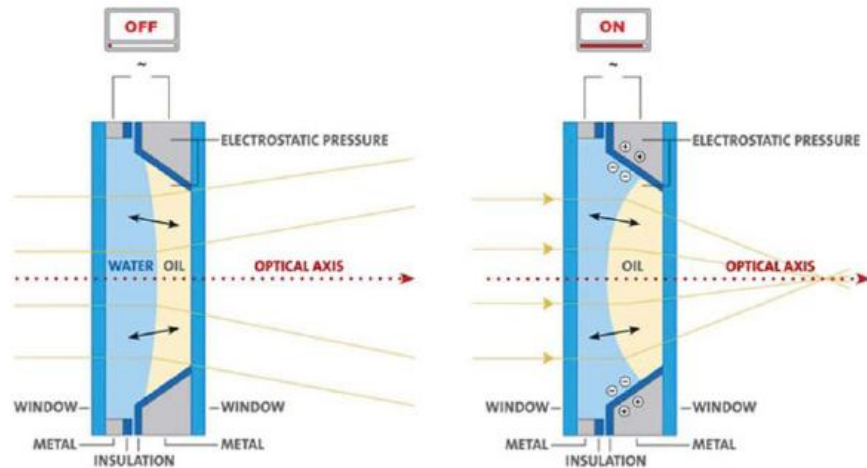


Fig. 17 Fonctionnement d'une lentille à focale variable développée par Varioptics et utilisant le principe d'électromouillage sur diélectrique. (<http://www.varioptic.com/en/index.php>)

b. Les papiers électroniques

La deuxième application dans ce domaine concerne les papiers électroniques : ceux-ci sont composés de pixels contenant chacun une goutte d'huile colorée. L'étalement de cette goutte par électromouillage permet de colorer les pixels activés et par conséquent d'afficher des informations sur le support.

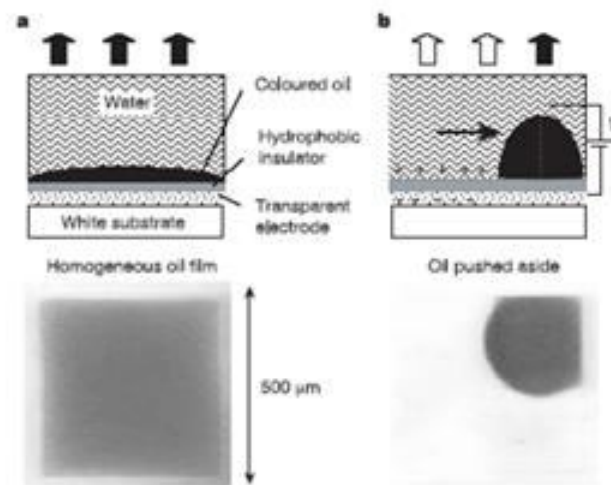


Fig. 18 Principe de fonctionnement du papier électronique. (<http://www.liquavista.com/default.aspx>).

3. Applications en biotechnologie

Le deuxième domaine d'application de l'électromouillage concerne le secteur des biotechnologies où le principe est utilisé pour actionner des gouttes contenant des réactifs et des échantillons biologiques.

a. Configuration fermée en électromouillage

Le déplacement de goutte est possible en configuration ouverte [Park, Lee et al.], néanmoins, les principales applications biologiques de l'électromouillage sont développées en système fermé. Les systèmes fermés comportent un capot reposant sur des murs et recouvrant l'intégralité de la puce. Le capot hydrophobe est mis à la masse et la puce est généralement remplie d'un liquide ambiant. La goutte est alors confinée entre la surface de la puce et le capot et adopte une forme aplatie. Les fonctions fluidiques élémentaires ont été largement étudiées et validées dans cette configuration. La présence du capot permet de limiter l'évaporation lors d'étapes de protocole nécessitant des montées en température. Ces systèmes fermés sont davantage utilisés pour l'intégration de protocoles complets dans les puces.

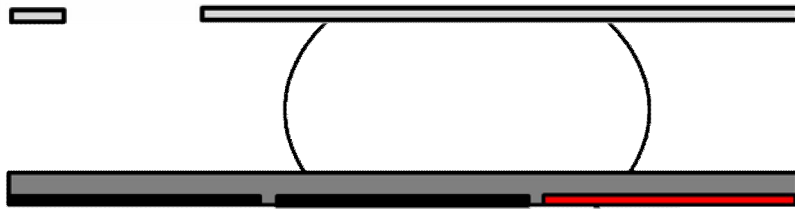


Fig. 19 Schéma représentant la configuration fermée en électromouillage. Le capot est percé afin de permettre l'introduction du liquide dans la puce.

b. Fonctions fluidiques élémentaires

A partir des modèles précédents, on sait que si une goutte est reliée à la masse, elle se déplacera spontanément vers l'électrode activée de manière à la recouvrir entièrement. L'exploitation de ce principe permet de réaliser la plupart des fonctions indispensables à l'intégration d'un protocole biologique [Cho, Moon et al. 2003] ou chimique [Dubois, Marchand et al. 2005; Dubois, Marchand et al. 2007] au sein d'une puce. Ces fonctions sont illustrées en s'appuyant sur l'exemple de la puce d'électromouillage développée dans notre laboratoire (Fig. 20).

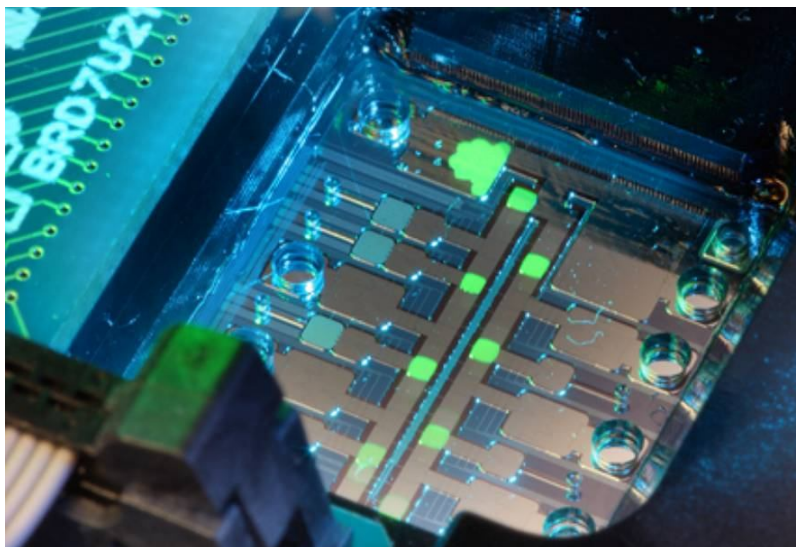


Fig. 20 Puce développée au LETI dans le cadre du projet Smartdrop.

Le chargement. Il s'agit de la première étape qui consiste à introduire l'échantillon dans la puce à l'aide d'une micropipette. L'électrode sous le réservoir est alors activée de manière à aspirer le liquide dans la puce à travers le trou percé dans le capot. Cette première étape de chargement permet d'optimiser la précision de l'étape de dispense (Fig. 21(a)).

La dispense de goutte. Le contrôle précis du volume des échantillons dispensés est un point crucial pour garantir le succès des protocoles à intégrer. Le volume des gouttes dispensées par électromouillage est directement relié à la taille des électrodes activées. Celle-ci étant parfaitement contrôlée et déterminée ($800\ \mu\text{m} \times 800\ \mu\text{m}$), la dispense de goutte de 64 nl se fait avec des coefficients de variation inférieurs à 3%. L'étape de dispense est réalisée en créant un doigt liquide par activation de trois électrodes (Fig. 21(b)). Puis l'on désactive l'électrode centrale tandis que l'électrode du réservoir est simultanément activée. Ceci permet de rompre le doigt liquide et de former une goutte au dessus de la troisième électrode.

Le déplacement. Il s'agit de la fonction la plus simple et néanmoins indispensable pour acheminer les échantillons vers les sites de réaction. En disposant les électrodes côte à côte on détermine un chemin emprunté par la goutte par activations successives des électrodes.

La coalescence, la séparation de gouttes. En dirigeant deux gouttes vers une même électrode, elles coalescent pour former une seule goutte (Fig. 21(c)). Au contraire à partir d'une grosse goutte, on peut former deux gouttes plus petites en activant les deux électrodes adjacentes et en désactivant l'électrode centrale. On note que les gouttes ont une taille minimale imposée par la surface des électrodes, d'où l'importance de bien cibler les besoins protocolaires (volume d'échantillon souhaité...) avant le dimensionnement d'une puce, des électrodes trop petites encombreraient inutilement l'interface de pilotage de la puce, des électrodes trop grandes imposeraient des volumes de réactifs trop importants.

Le mélange. Le mélange de deux gouttes est obtenu en déplaçant la grosse goutte en va et vient sur une quinzaine de cycle (Fig. 21(d)). A chaque cycle un brassage à l'intérieur de la goutte est généré et au bout de quelques secondes, un mélange homogène est obtenu.

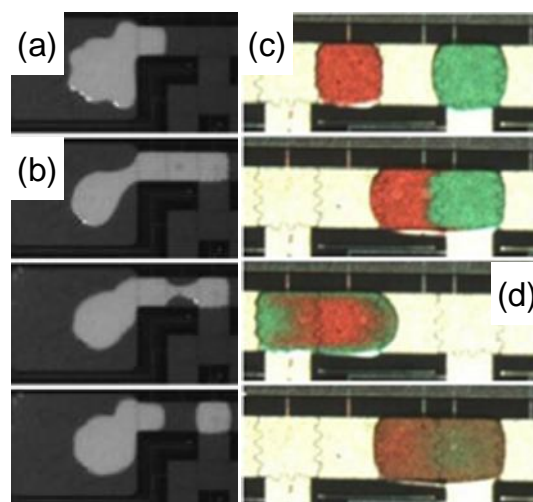


Fig. 21 Fonctions fluidiques élémentaires : le chargement (a), la dispense de goutte (b), la coalescence (c) et le mélange (d) sont réalisables sur puce par électromouillage sur diélectrique.

Les étapes sont automatisées et programmables grâce à une interface Labview. L'utilisation de dispositifs de détection optiques permet de suivre en temps réel le déroulement des réactions du type PCR (*Polymerase Chain Reaction*).

c. Exemples de protocoles biologiques intégrés

La maîtrise des différentes fonctions fluidiques permet d'envisager la réalisation complète et automatisée de protocoles biologiques au sein de la puce. A l'heure actuelle, certains protocoles complets ont été validés sur puce, les résultats étant comparables à ceux obtenus par les systèmes conventionnels. Ainsi, la détection de glucose dans des liquides biologiques tel que le plasma, l'urine, la salive a été réalisée [Srinivasan, Pamula et al. 2004]. La détection de brins d'ADN spécifiques par PCR [Wang, Li et al. 2005; Fouillet, Jary et al. 2006], la réparation de brins d'ADN [Fouillet, Jary et al. 2007] ou encore la préparation d'échantillons pour l'analyse protéomique [Wheeler, Moon et al. 2005] sont d'autres exemples de protocoles réalisés sur puce en utilisant le principe d'électromouillage .

On note dans tous les cas que l'utilisation de champs électriques ne semble pas dénaturer ou altérer la nature des échantillons biologiques.

Partie D : Electromouillage sur diélectrique : phénomènes associés et enjeux de la modélisation

*U*ne modélisation plus locale, basée sur le tenseur de Maxwell est nécessaire pour appréhender des phénomènes plus complexes associés à l'électromouillage. La saturation de l'angle de contact ainsi que le profil local de la goutte en sont des exemples concrets. La modélisation locale de l'électromouillage est également appliquée à deux phénomènes récemment observés en utilisant des signaux électriques alternatifs ; ce sont : les oscillations de gouttes et les recirculations hydrodynamiques. Ces deux phénomènes sont décrits et les objectifs de la thèse sont finalement exposés.

1. Approche locale par le tenseur de Maxwell

a. Origine de la force d'électromouillage

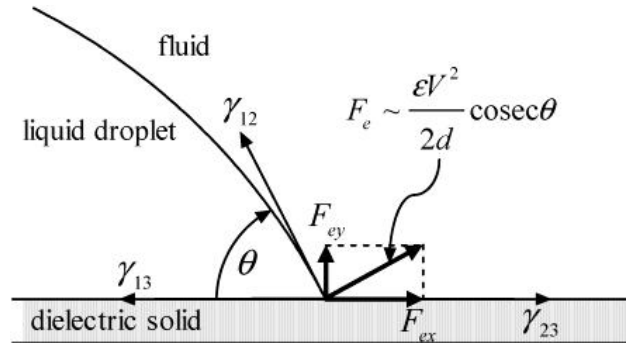


Fig. 22 Calcul de la force électrique agissant au point triple, selon [Kang 2002].

Les considérations énergétiques ne permettent pas de localiser le lieu d'application des forces électrostatiques responsables de l'étalement de la goutte. Pour cela, il faut regarder plus en détail la répartition du champ électrique dans le système et adopter une vision locale basée sur le tenseur des contraintes de Maxwell. Etant donné que la goutte est composée d'un liquide conducteur, le champ électrique y est nul à l'intérieur. Les charges électriques s'accumulent aux surfaces liquide-solide et liquide-liquide (équation (39)) et le champ électrique est normal à ces interfaces. Sur l'interface solide-liquide, loin du coin formé par le point triple, le champ électrique est dirigé suivant la verticale, donnant lieu à une contrainte électrique dirigée suivant le même sens qui est supportée par les couches diélectriques. A l'approche du point triple, le champ électrique s'intensifie par effet de coin et atteint des valeurs extrêmes. Le calcul du champ électrique au point triple est un problème très compliqué en raison du caractère singulier de cette région ; néanmoins un modèle basé sur une transformation conforme montre que le champ électrique à la surface de la goutte atteint un pic au voisinage du point triple et décroît très vite lorsqu'on s'éloigne du point triple [Vallet, Vallade et al. 1999]. A partir de ce modèle permettant d'estimer la répartition du champ électrique à la surface de la goutte, Kang (2002) intègre le tenseur de Maxwell et montre qu'une composante horizontale de la force électrostatique s'applique au point triple, sur une épaisseur comparable à l'épaisseur du diélectrique. C'est cette composante de force qui est responsable de l'étalement de la goutte lors de l'application du potentiel (Fig. 22).

b. Profil de goutte en EWOD

Le modèle précédent se base sur une surface de goutte arbitrairement choisie. En réalité, la courbure de la goutte est déterminée par l'équilibre entre la pression capillaire et la pression électrostatique. Le calcul du profil d'une goutte soumise à l'électromouillage a été réalisé avec un modèle numérique itératif [Buehrle, Herminghaus et al. 2003] et montre un résultat pour le moins étonnant : à l'échelle microscopique, la courbure de la goutte est indépendante du potentiel électrique appliqué et l'angle microscopique de la goutte est égal à l'angle de Young θ_0 , c'est à dire l'angle de mouillage de la goutte lorsque le potentiel électrique est nul (Fig. 23). Ce n'est qu'au delà d'une certaine distance comparable à l'épaisseur du diélectrique que la courbure de la goutte change afin de se raccorder à l'angle de contact apparent, c'est à dire celui que l'on observe à l'échelle macroscopique et tel que prédit par la loi de Berge. Ce

résultat est confirmé par les travaux de Bienia et *al.* [Bienia, Mugele et al. 2004; Bienia, Vallade et al. 2006] ainsi que ceux de Scheid et *al.* [Scheid and Witomski 2009].

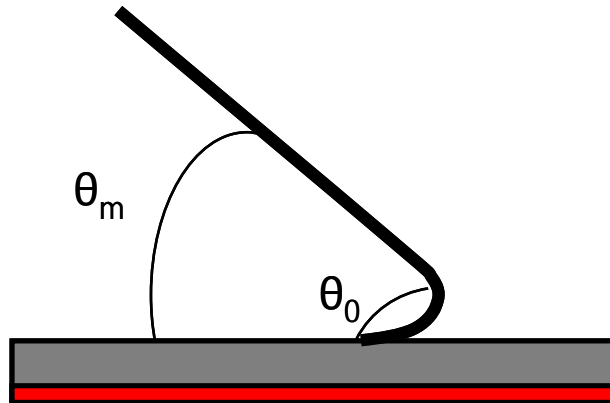


Fig. 23 Représentation schématique du profil d'une goutte a l'échelle microscopique.

c. Saturation de l'angle de contact

La loi de Berge prévoit un mouillage total de la goutte lorsque le potentiel électrique est suffisamment élevé. En pratique cette situation n'est jamais observée et la goutte adopte un angle de mouillage limite non nul en dessous duquel il est impossible d'accéder quand bien même la tension électrique serait augmentée. Ce phénomène limitant correspond à la *saturation de l'angle de contact*. La saturation est observée quelle que soit la technologie de puce utilisée et la nature des liquides mise en jeu. L'origine de ce phénomène continue d'alimenter les débats dans la communauté scientifique et aujourd'hui encore aucune certitude n'est acquise quant à son interprétation. Plusieurs hypothèses ont été avancées pour tenter d'expliquer la saturation : d'après Peykov (2000), la tension de surface effective liquide-solide décroît au fur et à mesure que la tension électrique augmente et atteindrait 0 J/m^2 à la saturation, valeur thermodynamique limite en dessous de laquelle elle ne peut pas descendre. Ce critère de stabilité est pourtant largement contesté [Mugele 2009]. D'autres mécanismes impliquant l'effet de coin du champ électrique près de la ligne triple ont alors été proposés : Vallet et al. émettent l'hypothèse qu'au voisinage de la ligne triple, le champ électrique est si intense qu'il ionise le milieu ambiant entraînant une fuite des charges électriques. Ils observent simultanément à la saturation, un pic de luminescence qu'ils relient à l'ionisation de l'air. Drygiannakis (2009) étudie le phénomène par la simulation numérique. D'après leur étude, ce sont les propriétés électriques de la couche d'isolation qui sont modifiées par le champ électrique intense qui règne près du point triple. Pour tenter de modéliser ce phénomène, les mailles de calcul situées dans le diélectrique ayant un champ électrique égal au champ de claquage voient leur comportement *isolant* changé en *conducteur électrique*, laissant échapper les charges électriques accumulées à l'interface solide liquide (Fig. 24). Enfin, d'après Shapiro (2003), la saturation serait liée à la résistivité électrique de la goutte qui augmenterait progressivement à mesure que l'angle de contact diminue et limiterait ainsi l'énergie électrostatique stockée dans les couches diélectriques. Dans ce modèle, la couche diélectrique n'est pas parfaite et sa conductivité électrique doit être prise en compte.

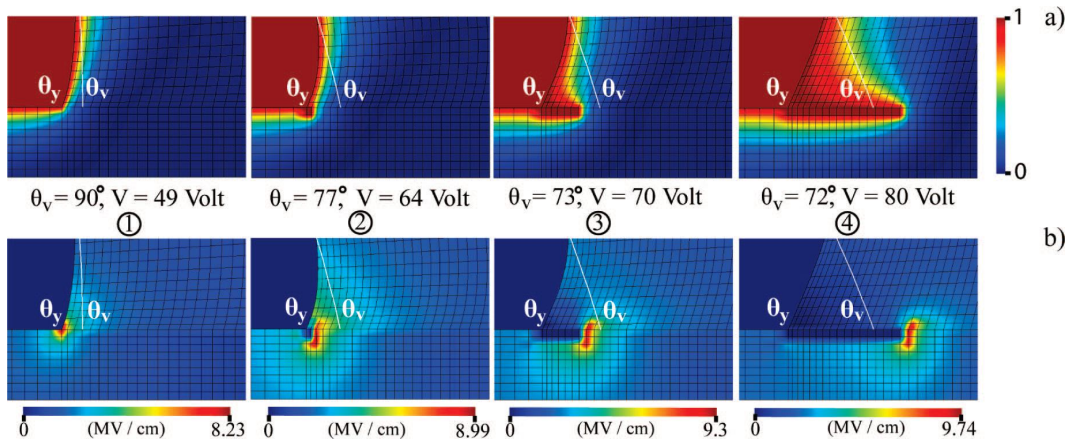


Fig. 24 Calculs numériques du potentiel (a) et du champ électrique (b) au voisinage du point triple. (tiré de [Drygiannakis, Papathanasiou et al. 2009]).

Rien ne garantit qu'il n'y ait qu'un seul et unique mécanisme capable de déclencher la saturation : suivant les situations (technologie de puce employée, liquide utilisé...) tel ou tel mécanisme évoqué ci-dessus pourrait se produire et provoquer la saturation. On peut également penser que la saturation se déclenche dès lors que plusieurs des mécanismes évoqués apparaissent simultanément. Bien qu'il ait déjà fait couler beaucoup d'encre, le phénomène reste encore à éclaircir. L'une des principales difficultés est l'estimation du champ électrique au voisinage de la ligne de contact.

2. Electromouillage en signal alternatif

a. Loi de Berge en signal AC

Les considérations évoquées ci-dessus sont valables quelle que soit la nature du signal électrique délivré. Néanmoins pour des tensions alternatives, l'angle de contact moyen suit la loi de Berge classique,

$$\cos(\theta_m) = \cos(\theta_0) + \frac{CV_{eff}^2}{2\gamma}, \quad (73)$$

et modifiée pour la configuration à deux électrodes coplanaires,

$$\cos(\theta_m) = \cos(\theta_0) + \frac{CV_{eff}^2}{8\gamma}, \quad (74)$$

où V_{eff} est la différence de potentiel électrique efficace donnée par la relation,

$$V_{eff} = \frac{V_0}{\sqrt{2}}, \quad (75)$$

V_0 étant l'amplitude maximale du signal électrique. En réalité, les équations (73) et (74) ne sont valables que pour sur une plage de fréquence dont les bornes inférieures et supérieures correspondent à une fréquence de coupure hydrodynamique et à une fréquence de coupure électrique respectivement :

En dessous de la fréquence de coupure hydrodynamique, la goutte est assujettie à des oscillations d'amplitudes élevées qui affectent l'angle de contact de la goutte.

Pour des fréquences trop élevées, l'écrantage du champ électrique par les porteurs de charges électriques dans la goutte est mis à défaut et l'hypothèse de goutte parfaitement conductrice n'est plus valable.

b. Oscillations de goutte

L'utilisation d'un signal électrique alternatif a donc pour effet d'engendrer des oscillations de gouttes. Le phénomène n'a été observé que très récemment, dans une configuration ouverte avec électrodes coplanaires [Cooney, Chen et al. 2006]. Un peu plus tard, Ko et al. (2008) mettent en évidence ces oscillations dans la configuration à électrode plongeante tandis que Oh et al. (2008) fournissent une explication sur leur origine : lorsque le signal électrique est alternatif, la contrainte de Maxwell, proportionnelle au carré de la tension se décompose en une partie stationnaire et une partie instationnaire. La partie stationnaire gouverne l'étalement moyen de la goutte tandis que la partie instationnaire génère les oscillations dont l'amplitude et le mode dépendent de la fréquence d'excitation et des caractéristiques de la goutte (rayon, tension de surface...).



Fig. 25 Profil de goutte à 180 Hz. Image tirée de [Miraghaie, Sterling et al. 2006].

Tandis que la goutte est soumise à des oscillations, un écoulement hydrodynamique est simultanément observé.

c. Recirculations hydrodynamiques

Un effet tout aussi spectaculaire que les oscillations concerne la création d'écoulements hydrodynamiques au sein des gouttes. Ce phénomène a été observé dans la configuration à électrodes coplanaires [Davoust, Fouillet et al. 2007]. La goutte est posée sur les deux électrodes et activée avec un signal alternatif d'amplitude $90 V_{\text{eff}}$. On observe une structure d'écoulement caractéristique mettant en jeu 4 tourbillons sur une large bande de fréquence allant de quelques centaines d'Hertz à 10 kHz environ (Fig. 26). Au-delà, le phénomène s'atténue peu à peu jusqu'à totalement disparaître (13-15 kHz). Les vitesses d'écoulement sont de l'ordre du millimètre par seconde et le phénomène est observé indépendamment de la conductivité électrique de la goutte ; les recirculations sont ainsi observées avec de l'eau déionisée ainsi qu'avec des solutions salines de type PBS (Phosphate Buffered Saline). Ko et al. (2008) observent également ces recirculations mais dans la configuration avec électrode plongeante. Ils notent des structures d'écoulement toroïdales mais n'observent pas de configuration d'écoulement quadripolaire. Leur écoulement présente néanmoins deux points

communs : il est indépendant de la conductivité électrique de la goutte et disparaît également entre 10 et 15 kHz. Ces auteurs font le lien entre la présence des écoulements et l'observation des oscillations et montrent également, sans pouvoir l'expliquer, qu'un deuxième régime d'écoulement, très dépendant de la conductivité électrique de la goutte, se produit à très haute fréquence (128 kHz) sans qu'aucune oscillation de la goutte ne soit plus observée.

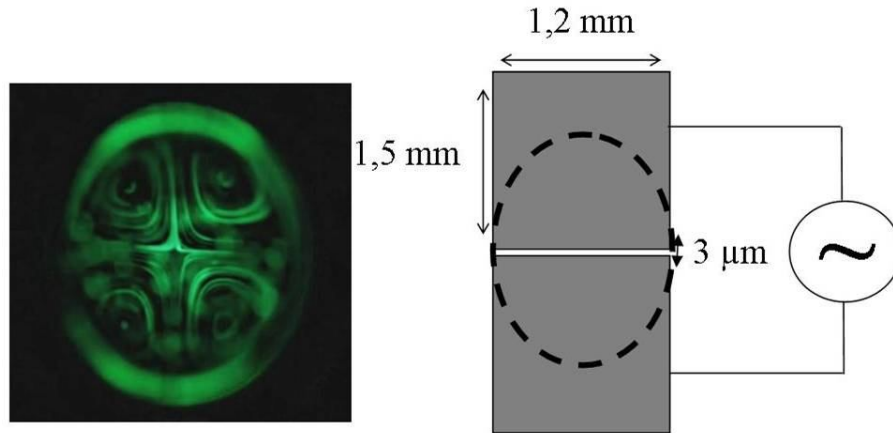


Fig. 26 Vue de dessus des recirculations observées dans une goutte contenant des billes dans la configuration d'électrodes coplanaires représentée à gauche. La fréquence du signal électrique est de 1 kHz.

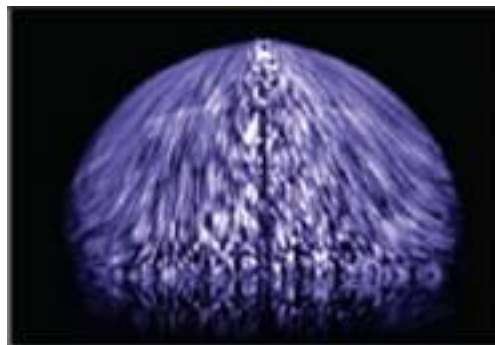


Fig. 27 Écoulement observé par Ko *et al.* dans la configuration à électrode plongeante. La fréquence du signal électrique est de 1kHz. Image tirée de [Ko, Lee et al. 2008].

3. Objectifs de la thèse

a. Motivations et enjeux

L'étude du phénomène d'écoulement a été motivée pour les raisons suivantes :

- i) Tout d'abord, les écoulements observés mettent en jeu des vitesses tout à fait remarquables au vu de l'échelle de longueur impliquée.
- ii) Par ailleurs, l'écoulement en surface se présente dans certaines configurations de manière structurée, avec une organisation quadripolaire laissant en perspective l'idée séduisante de contrôler les structures d'écoulement à la demande.
- iii) Enfin, le phénomène était mal maîtrisé et s'avérait être capricieux présentant des interruptions ou ne se produisant pas, sans comprendre l'origine de ces intermittences. La

compréhension des mécanismes régissant ce phénomène en vue de sa maîtrise représente la principale raison de ce travail.

Alors que l'état de l'art sur les écoulements induits par l'électromouillage et sur les oscillations était quasiment inexistant avant le lancement de la thèse, plusieurs mécanismes physiques ont été un temps envisagés pour expliquer ce phénomène parmi lesquels des effets Marangoni, des phénomènes liées à la saturation de l'angle de contact ou encore des forces coulombiques agissant sur les traceurs de l'écoulement. Celui qui a cependant été retenu concerne l'action de forces électriques tangentielles en surface de la goutte. Ce mécanisme bien décrit dans la littérature par Taylor et Melcher (1969) est en effet capable de générer des écoulements en goutte à partir de champs électriques et des configurations quadripolaires semblables à celles observées dans nos expériences sont mises en évidence. L'étude de ce phénomène a constitué le point de départ de cette thèse. Au fur et à mesure des calculs numériques et de nos observations expérimentales et compte tenu d'un certain nombre d'articles récemment parus dans la littérature, l'étude s'est recentrée sur les oscillations de gouttes.

b. Configuration d'étude

Les configurations ouvertes en électromouillage sont particulièrement adaptées aux études fondamentales. La goutte adopte une forme imposée par la capillarité et n'est pas perturbée par la présence d'un capot. L'observation du profil de goutte est facilitée tandis que l'éclairage peut être adapté suivant la direction d'observation (vue de dessus, vue de profil...). Nous avons donc opté pour une étude du phénomène en configuration ouverte. Les principales applications notamment concernant le projet Smartdrop étant néanmoins développées en configuration fermée, nous finirons notre étude en considérant les écoulements en configuration fermée en guise d'ouverture et de perspectives.

La configuration d'étude de départ consistait à observer depuis le dessus une goutte reposant sur un motif d'électrodes rectangulaire. C'est dans cette configuration qu'ont été observés les écoulements quadripolaires en goutte. Au fil de l'étude cependant, l'observation de profil s'est avérée être indispensable pour comprendre l'origine des écoulements. En modifiant le montage expérimental de manière à permettre la visualisation de profil, deux choix de configuration s'offraient à nous :

i) Adopter la configuration d'électrode classique comportant une électrode plongeante (Fig. 15). Cette configuration présente néanmoins l'inconvénient d'introduire une perturbation au sommet de la goutte, susceptible de gêner l'écoulement ainsi que l'analyse d'images par détection de contours.

ii) Conserver notre configuration à électrodes coplanaires (Fig. 16(b)). En contrepartie, l'étalement de la goutte par électromouillage est moins important pour une différence de potentiel électrique donnée (équation (74)).

Un motif d'électrodes en forme de demi-lune a permis d'étudier l'électromouillage et les recirculations dans une configuration d'étude relativement simple. La compréhension des phénomènes a ensuite permis d'expliquer la structure d'écoulement quadripolaire dans la configuration à électrodes rectangulaires (Fig. 26).

Conclusion du chapitre 1 :

Ce chapitre introductif a permis de présenter le contexte des laboratoires sur puce et de la microfluidique. Les deux approches classiquement utilisées pour manipuler les fluides à petite échelle ont été présentées. Notre étude se situe dans le cadre de la microfluidique digitale. Parmi les différents mécanismes actionneurs possibles, l'utilisation des champs électriques offre probablement le plus de possibilité en termes d'intégrabilité et de fiabilité. Les régimes d'équilibres induits par des champs électriques dans les gouttes ont été présentés et certaines applications ont été illustrées. Alors que des modèles assez simples permettent d'expliquer les fonctions de base de l'électromouillage, tel que l'étalement de la goutte ou le déplacement, des phénomènes plus complexes lui sont associés notamment lorsque des signaux alternatifs sont utilisés. C'est le cas par exemple des écoulements en goutte. Aux débuts de la thèse, le phénomène n'était pas encore référencé dans la littérature et notre dispositif expérimental nous limitait à une observation de dessus, éléments que nous traiterons dans le chapitre 2. Notre point de départ pour expliquer les écoulements quadripolaires que nous observions était l'action de contraintes électriques tangentielles à la surface de la goutte (chapitre 3). Suite aux résultats des calculs numériques et à des observations rendues possibles par les améliorations du banc du banc expérimental, nous avons alors observé qu'un phénomène d'oscillations de goutte se produisait et qu'il pouvait être à l'origine des recirculations. Cette piste a été confirmée peu de temps après par Ko *et al.* (2008). Nous avons alors recentré l'étude sur les oscillations de gouttes et les écoulements qu'ils pouvaient induire (chapitre 4). Le choix de la configuration d'étude coplanaire, différente de celle classiquement utilisée (électrode plongeante) a été justifiée dans ce chapitre et se traduit par l'observation de structures d'écoulement originales présentées dans la suite de cette thèse.

CHAPITRE 2 : Développements technologiques et banc d'expérimentation

***L**es travaux menés dans le cadre de cette thèse étant assez éloignés des applications en électromouillage développées dans le laboratoire dans le cadre du projet Smartdrop, il a fallu créer des puces d'électromouillage adaptées à notre étude, monter un banc expérimental opérationnel et développer des logiciels de pilotage et d'analyse. Cette partie est consacrée aux aspects technologiques, expérimentaux et méthodologiques mis en œuvre dans le cadre de cette thèse.*

*La **partie A** décrit la technologie utilisée pour réaliser les puces à électromouillage. Les caractéristiques nécessaires au bon fonctionnement de ces composants sont détaillées et les matériaux utilisés dans le cadre de nos travaux sont présentés. Les étapes technologiques permettant de réaliser ces puces en salle blanche sont décrites et les choix réalisés sur les motifs d'étude sont expliqués.*

*Dans la **partie B** les différents composants du banc expérimental sont présentés. Les solutions retenues concernant les sources électriques et lumineuses sont justifiées. Les matériaux fluides utilisés sont caractérisés et les principaux protocoles ayant servis à réaliser les expériences d'électromouillage, d'oscillations et d'écoulements sont introduits.*

*La **partie C** présente les logiciels qui ont été développés dans le cadre de cette thèse et qui ont permis de piloter le banc expérimental et d'analyser les résultats des expériences. Les raisons ayant motivé le développement de tels logiciels sont exposées puis leur fonctionnement est détaillé.*

Partie A : Les puces à électromouillage

1. Les puces EWOD

a. Caractéristiques des puces

Les puces d'électromouillage sont des composants capables de modifier l'angle de contact d'une goutte par application d'un champ électrique. Pour accomplir cette fonction, il faut arriver à concilier plusieurs exigences, dont certaines sont contradictoires, et donc parvenir à un compromis assurant un fonctionnement optimal du composant. Par fonctionnement optimal, on entend la capacité à modifier amplement l'angle de mouillage de la goutte en utilisant une tension électrique aussi faible que possible. A travers la formulation du problème on se rend compte que tout l'enjeu de la réalisation du composant est de réussir à concilier les propriétés de surface avec les propriétés électriques des matériaux.

Pour faciliter le déplacement de la goutte, la surface de la puce doit présenter une hystérésis d'angle de contact aussi faible que possible. Son affinité avec la goutte doit être réduite au minimum ce qui conduit à choisir des surfaces hydrophobes. De plus, étant destiné à être en contact avec des produits susceptibles de l'altérer, le matériau composant la surface de la puce doit être chimiquement inerte et présenter une grande stabilité afin de garantir à la fois une reproductibilité et une longévité satisfaisantes.

D'un point de vue électrique, l'objectif est de minimiser la tension requise pour l'électromouillage en maximisant la capacité électrique formée par les matériaux composant la puce. Pour cela, il faut disposer de matériaux ayant des permittivités électriques aussi élevées que possible. L'épaisseur de la couche diélectrique doit être suffisamment faible pour former une capacité électrique élevée mais dans le même temps, le champ électrique traversant le diélectrique doit rester inférieur au champ de claquage du matériau, ce qui impose une épaisseur de diélectrique minimale pour une tension électrique donnée. Les courbes représentées sur la figure 28 permettent d'illustrer ce compromis. La courbe en pointillés représente la tension de claquage de la couche diélectrique en fonction de son épaisseur et la courbe en trait plein représente la tension nécessaire pour modifier l'angle de contact de 120° à 70°. Dans cet exemple, le claquage de la couche diélectrique sera évité si son épaisseur est supérieure à 2 μm , ce qui implique une tension d'alimentation minimale de 90 V environ.

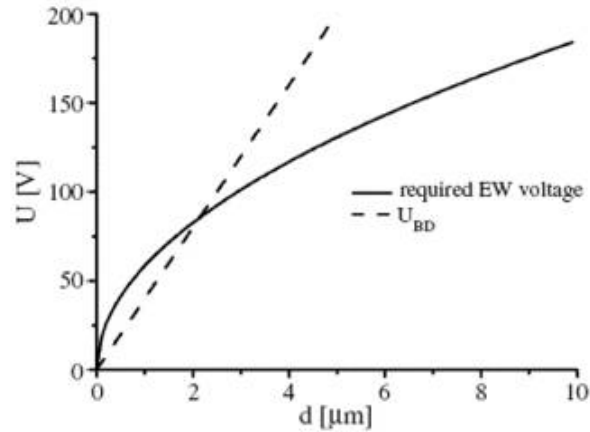


Fig. 28 En trait plein : Tension nécessaire pour modifier l'angle de contact de 120° à 70° d'une goutte d'eau dans l'air en fonction de l'épaisseur du diélectrique d . En pointillé : tension de claquage du diélectrique dont la permittivité relative est de 2 et le champ de claquage est de $40 \text{ V}/\mu\text{m}$. D'après [Mugele and Baret 2005].

Le problème est qu'il n'existe pas à l'heure actuelle un matériau qui remplisse tous ces critères simultanément, c'est-à-dire qui ait des propriétés de surface satisfaisantes (hydrophobe, à faible hystérésis) et de bonnes propriétés diélectriques (champ de claquage et permittivité électrique élevés).

La première solution consiste à utiliser un matériau hydrophobe tel que le Téflon AF ou certains de ses dérivés (Cyttop, C_4F_8) et de s'en servir également comme matériau diélectrique. Le Téflon peut être déposé par enduction centrifuge (*spin-coating*) sur une large gamme d'épaisseurs allant de la dizaine de nanomètres à plusieurs micromètres et présente de bonnes propriétés de surface (l'hystérésis d'une goutte d'eau dans l'air est inférieur à 10°) ainsi qu'un champ de claquage élevé (environ $200 \text{ V}\cdot\mu\text{m}^{-1}$). L'inconvénient de cette approche est que les faibles permittivités des matériaux hydrophobes (permittivité électrique relative voisine de 2) obligent à utiliser des tensions électriques élevées. La paraffine, le PTFE et le PET [Janocha, Bauser et al. 2000] sont des exemples de matériaux polymères qui ont été utilisés de la même manière et qui présentent le même inconvénient.

Une solution alternative consiste à utiliser deux matériaux, l'un ayant de bonnes propriétés électriques (permittivité électrique et champ de claquage élevés), l'autre ayant de bonnes propriétés de surface (hydrophobe et faible hystérésis). En séparant chacune des deux fonctions, on arrive à optimiser les épaisseurs de couches et à fonctionner à des tensions relativement faibles.

Les couches diélectriques classiquement utilisées sont de type inorganiques et réalisées à base de SiN dont les permittivités électriques relatives tournent autour de 6. Ces matériaux communs de la microélectronique présentent l'avantage d'être déposés par des procédés bien maîtrisés. L'usage d'autres matériaux tels que le Parylène N ou le Parylène C [Pollack, Shenderov et al. 2002] est également très répandu avec l'utilisation quasi systématique d'un revêtement en Téflon.

b. Choix des matériaux

A ces contraintes s'ajoutent des considérations d'ordre technologique, les procédés associés à chaque matériau devant être suffisamment robustes et reproductibles. Concernant la réalisation technologique des puces, nous avons pleinement bénéficié du travail de l'équipe affectée au projet Smartdrop. Le choix des matériaux retenus dans le laboratoire pour réaliser les puces à électromouillage a été motivé par la volonté d'intégrer toutes les étapes de fabrication dans une chaîne de procédés hérités du savoir faire de la micro-électronique. Les étapes de fabrication des puces sont donc entièrement réalisées dans les salles blanches du CEA-LETI MINATEC et utilisent les procédés standards de la microélectronique. Le matériau phare de la microélectronique étant le silicium, nos puces d'électromouillage sont fabriquées à partir de silicium et de ses dérivés.

Le matériau composant la couche diélectrique est le nitrure de silicium Si_3N_4 alors que la surface de la puce est composée de SiOC, un oxyde de silicium hydrophobe dont les caractéristiques sont données sur le tableau suivant :

Matériau	Permittivité électrique	Champ de claquage	Epaisseur	Propriétés de mouillage eau/air
Si_3N_4	$\epsilon_r = 6,3\epsilon_0$	10^9 V/m	600 nm	
SiOC	$\epsilon_r = 2,75\epsilon_0$	$1-4,8 \cdot 10^8$ V/m	1000 nm	angle de contact 105° hystérésis $< 10^\circ$

Tab. 3 Propriétés des couches diélectriques composant nos puces d'électromouillage.

Le champ de claquage élevé du Si_3N_4 ainsi que sa permittivité en font un diélectrique performant pour un usage en électromouillage. Quant au SiOC, de longues recherches sur le choix des précurseurs et les conditions de dépôt par plasma ont permis d'optimiser ses propriétés hydrophobes, avec un angle de contact eau/air de 105° et une hystérésis inférieure à 10° [Thery, Borella et al. 2007]. Tout comme le Téflon, le SiOC peut être déposé sur une large gamme d'épaisseurs allant de quelques nanomètres à plusieurs micromètres, il présente néanmoins deux avantages sur le Téflon : il est totalement compatible avec les procédés utilisés en salle blanche et peut être déposé de manière homogène sur des surfaces présentant des reliefs, ce qui est beaucoup plus délicat à réaliser avec le Téflon en utilisant l'enduction centrifuge.

2. De la conception à la réalisation des puces

a. Procédés de fabrication

Le support sur lequel sont réalisées les puces est composé de plaques en silicium circulaires d'un diamètre de 200 mm et d'une épaisseur de 725 μm , appelé *wafer* (Fig. 30). Un lot comporte une ou plusieurs plaques, contenant chacune 44 puces carrés de 21,7 mm de coté.

Deux lots de puces ont été réalisés durant cette thèse pour lesquels nous avons suivi les étapes de fabrication en salle blanche. La réalisation de ces lots a été l'occasion de découvrir l'environnement en salle blanche et certains procédés technologiques classiques relevant de la microélectronique. La description simplifiée de ces différentes étapes technologiques est résumée ci-dessous (Fig. 29) :

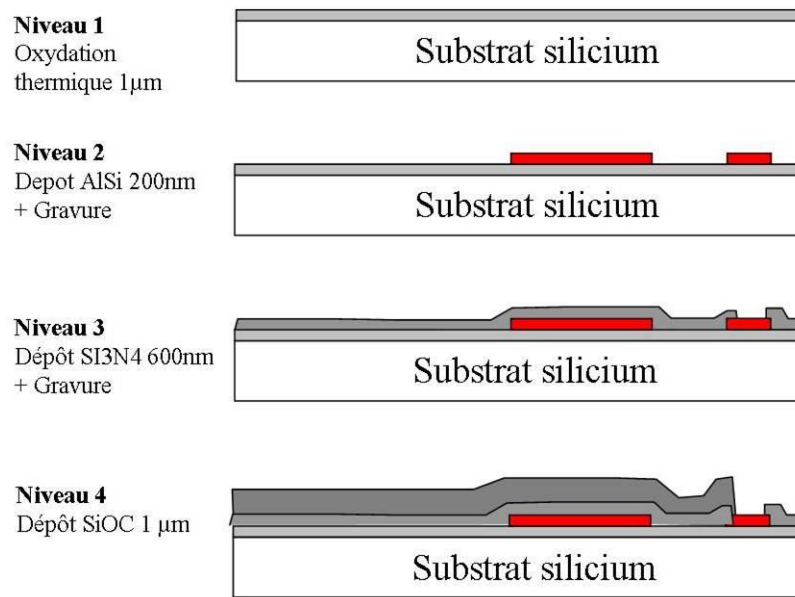


Fig. 29 Etapes de fabrication des puces à électromouillage.

La première étape consiste à oxyder la surface du wafer à l'aide d'un traitement thermique (1100°C). Il en résulte la création d'une couche de SiO₂ (niveau 1). Suit le dépôt d'une couche de métal AlSi dont l'épaisseur est de 200 nm. La couche métallique recouvre alors l'intégralité de la plaque. Une étape de photolithographie suivie d'une gravure sèche permet alors de réaliser les électrodes et les lignes de connexion du niveau métallique (niveau 2). L'étape qui suit consiste à déposer la couche de Si₃N₄ (600 nm d'épaisseur) par PECVD (Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition). Il faut alors ouvrir la couche diélectrique au niveau des plots pour permettre la connexion des électrodes avec l'extérieur. Une étape de photolithographie suivie d'une gravure du Si₃N₄ permet de réaliser ces ouvertures (niveau 3). La plaque est ensuite découpée de manière à individualiser les puces. Les zones réservées pour la reprise de contact sont protégées par masquage tandis que sur le reste de la puce un dépôt par plasma de SiOC (1 μm d'épaisseur) est réalisé (niveau 4). La puce est alors prête à être utilisée pour les expériences d'électromouillage.

b. Masques souples et masques durs

Les puces existantes dans le laboratoire n'étant pas adaptées à l'étude que nous voulions mener, nous avons dû personnaliser nos puces en dessinant des motifs d'électrodes susceptibles d'être exploitables dans le cadre de nos travaux. Les motifs d'électrodes de la puce peuvent être personnalisés à travers le dessin des masques photolithographiques. Il existe deux types de masque photolithographique, les masques durs et les masques souples. Les masques durs sont des supports permettant de réaliser des motifs dont la résolution est de l'ordre du μm. La résolution graphique des masques souples n'est que de la dizaine de μm mais leur coût est moins élevé et ils sont plus rapides à produire (2 mois contre 4 à 6 mois avec des masques durs).

Le premier lot de puces (environ 140 puces) était un lot multi-projet utilisant une technologie de masques durs. Il a permis de tester plusieurs types de géométrie d'électrodes et de retenir les configurations utilisées pour l'étude théorique.

Suite à certaines observations faites avec des puces du premier lot, un deuxième lot a été réalisé. Les puces de ce second lot ne comportant pas de motifs nécessitant une résolution très grande, nous nous sommes tournés vers une technologie de masques souples plus rapide à réaliser. Ces puces ont été produites à grande échelle (Fig. 30) en raison de l'application pour lesquelles elles ont été réalisées et qui est décrite par la suite.

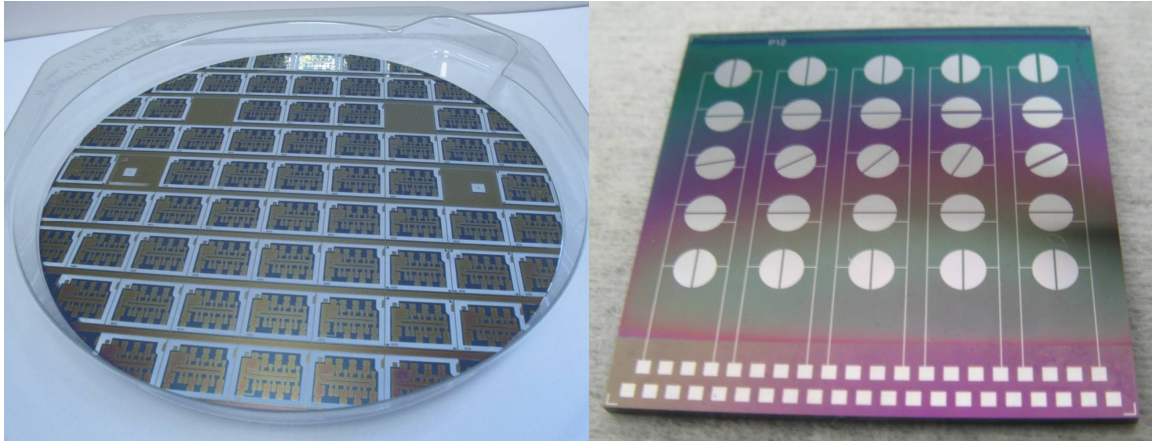


Fig. 30 Exemple de wafer produit en salle blanche pour le projet Smartdrop (à gauche) et photographie d'une puce à électromouillage utilisée dans le cadre de cette thèse et issue du second lot (à droite).

c. Motifs étudiés

Les électrodes sur chacune des puces ont été dessinées de manière à optimiser au maximum la surface de puce utilisable. Chaque puce comporte ainsi en moyenne 25 paires d'électrodes. Ces paires se répartissent en une vingtaine de motifs qui diffèrent les uns les autres par la géométrie de leurs électrodes, la taille et la forme de l'espace inter-électrodes (entrefer), leur orientation ... Tous les motifs d'électrodes n'ont pas pu être étudiés durant cette thèse; cependant, les motifs d'électrodes retenus pour l'étude (Fig. 31) donnent un aperçu largement représentatif des principaux phénomènes observés dans les différentes configurations.

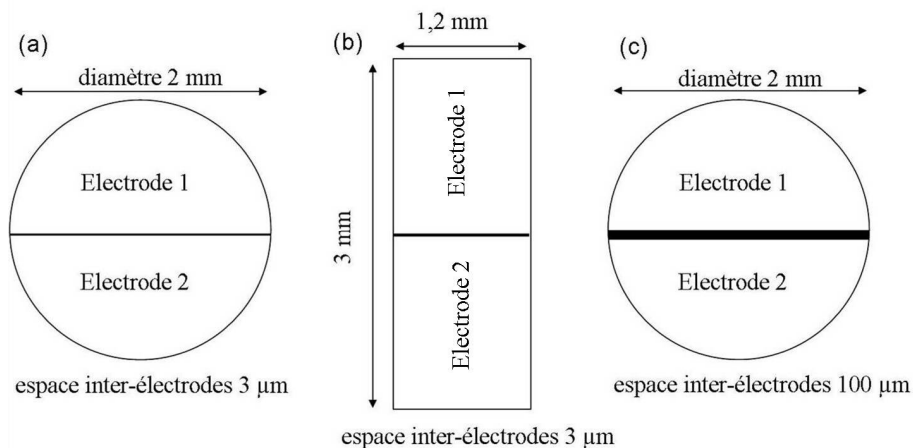


Fig. 31 Motifs d'électrodes retenus dans le cadre de l'étude. Le motif (a) a été utilisé dans le chapitre 3 et le chapitre 4 (partie A et B). Le motif (b) a été utilisé dans la partie C du chapitre 4 tandis que le motif (c) a servi dans le chapitre 5 (partie A).

Le premier motif (Fig. 32(a)) est le motif de référence ayant servi à la plupart des expériences. Il a été préféré au motif d'origine (électrodes rectangulaires) car il permet de créer une configuration de mouillage plus académique et plus propice à l'utilisation de modèles. Le faible espace inter-électrodes ($3\ \mu\text{m}$) est alors négligeable d'un point de vue du mouillage et le motif crée alors des configurations d'électromouillage et d'oscillations axisymétriques qui se prêtent bien à une étude théorique.

Le second motif (Fig. 32(b)) comportant des électrodes rectangulaires correspond au motif d'origine ayant permis de visualiser les écoulements quadripolaires lors des expériences réalisées dans le laboratoire avant le début de la thèse. Comme nous l'avons dit au dessus, ce motif a été temporairement mis de côté le temps de l'étude théorique. Il est alors réutilisé et étudié par la suite afin de comprendre la structure d'écoulement qui lui est associée.

Enfin, le troisième motif (Fig. 32 (c)) comporte un espace inter-électrodes de $100\ \mu\text{m}$. Quelques uns de ces motifs ont été réalisés lors du premier lot. Des observations faites sur l'écoulement produit sous huile avec des billes de polymère nous ont poussés à produire ce motif en grand nombre afin de le tester avec des cellules biologiques. La contamination de la surface de la puce par les cellules justifie alors la production à grande échelle, l'objectif étant de réserver les motifs les plus rares (caractérisés par un espace inter-électrodes de $3\ \mu\text{m}$) à l'étude théorique.

Partie B : Montage et protocoles expérimentaux

1. Banc expérimental

Pour réaliser nos expériences, il faut équiper notre montage d'une source d'énergie électrique, d'une connectique adaptée et de moyens optiques pour visualiser des gouttes millimétriques oscillant à plusieurs centaines de Hertz. Un schéma du banc expérimental est représenté sur la figure 32. Ce banc permet de réaliser les expériences d'électromouillage, de visualiser les oscillations de gouttes et de suivre les écoulements qui s'y produisent à l'intérieur.

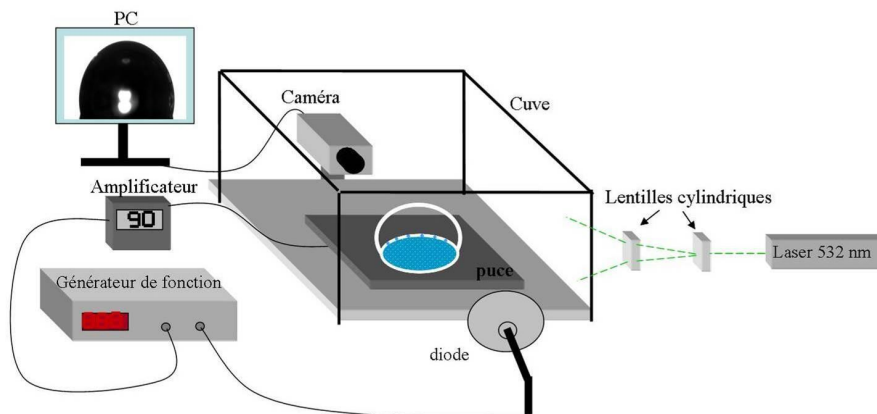


Fig. 32 Schéma du banc expérimental.

Le générateur de fonction alimente la puce en énergie électrique. La caméra et l'éclairage situé en arrière plan permettent de visualiser la goutte de profil. Cette caméra est, tout comme le générateur de fonction, pilotable par l'ordinateur. Un module laser associé à un jeu de deux lentilles cylindriques produit une nappe laser traversant la goutte afin de visualiser les écoulements internes. Enfin une binoculaire placée au dessus de la puce (non représentée dans le schéma) permet de visualiser l'écoulement depuis le dessus. Les différents composants du banc sont détaillés ci-dessous.

a. Sources électriques

Lors des premières expériences nous avons utilisé un générateur haute tension (Trek 677 B) pouvant délivrer une tension sinusoïdale d'amplitude constante sur une gamme de fréquence couvrant quelques dizaines de hertz à plusieurs milliers d'Hertz. Néanmoins l'utilisation d'un tel générateur s'accompagnait de mesures de sécurité restrictives, comme l'obligation de réaliser toutes les expériences sous hôte de protection électrique. Pour éviter cela nous avons préféré utiliser des sources électriques plus sécurisées et qui sont de plus couramment utilisées dans le laboratoire notamment dans le cadre du projet Smartdrop. Ainsi, un générateur de fonction (Yokogawa FG120) est utilisé comme source d'énergie électrique. Ce générateur permet de délivrer des signaux alternatifs et créneaux d'amplitude maximale de 20 V sur une plage de fréquences couvrant largement la gamme de fréquences dans laquelle nous

travaillons. Par ailleurs grâce à ses deux sorties TTL, il est capable de délivrer deux signaux synchronisés de nature différente ce qui va s'avérer très précieux pour la suite. Enfin, ce générateur de fonction est muni d'un port *GPIB* le rendant facilement pilotable par un environnement *Labview* . Cependant il n'alimente pas directement la puce ; un amplificateur de signal électrique réalisé en interne est placé à sa sortie permettant d'élever le niveau de tension électrique. Le gain d'amplification, défini par le ratio entre la tension délivrée par l'amplificateur et la tension consigne du générateur de fonction a été caractérisé (Fig. 33) et varie en fonction de la fréquence :

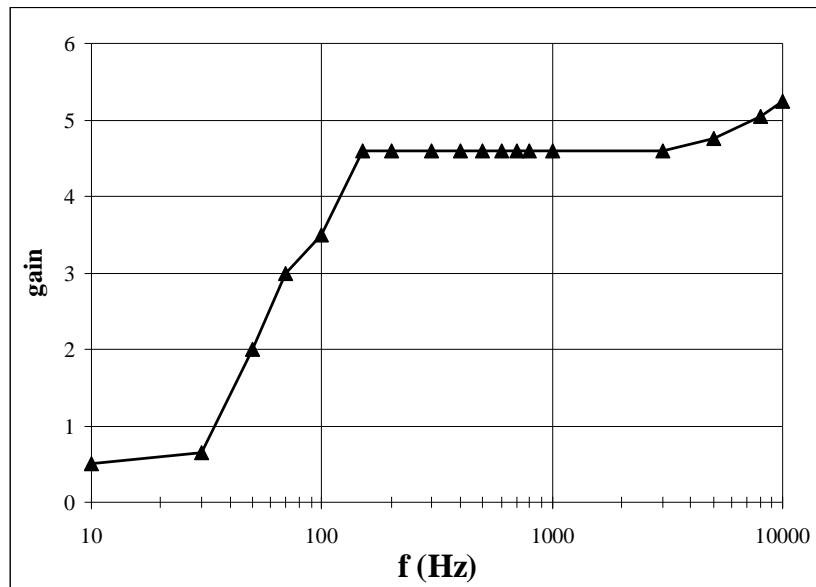


Fig. 33 Courbe représentant le gain de l'amplificateur en fonction de la fréquence du signal électrique.

Entre 150 Hz et 3000 Hz, le gain de l'amplificateur est à peu près constant, c'est dans cette plage de fréquences que se situent la plupart de nos expériences tandis que pour les expériences réalisées en dessous de 150 Hz, on doit tenir compte de la chute de potentiel électrique : sa valeur maximale n'est plus que de 60 V_{eff} à 70 Hz contre 91,7 V_{eff} à 200 Hz.

b. Connectique du banc

La connectique électrique de la puce a été l'une des principales difficultés dans la mise en place du banc d'expérimentation. En effet, la connectique existante dans le laboratoire ne permettait pas de visualiser les gouttes de profil (Fig. 34) mais n'offrait que la possibilité d'observer le système de dessus. Ainsi, au début de la thèse, les expériences étaient uniquement menées avec la visualisation de dessus. Puis la curiosité nous a poussés à vouloir visualiser l'écoulement de profil. Pour cela nous avons utilisé une connectique de fortune composée d'aiguilles de seringues reposant sur les reprises de contact. C'est à ce moment là que nous nous sommes rendus compte que la forme de la goutte n'était pas statique mais qu'elle oscillait rapidement avec des régimes d'oscillations pouvant être très importants. Dès lors, l'observation de profil était devenue une nécessité afin de pouvoir étudier ce phénomène.

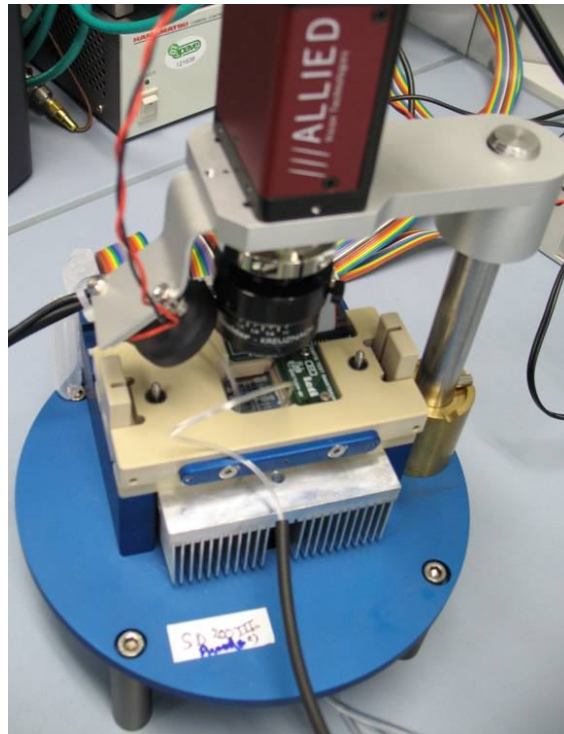


Fig. 34 Banc d'électromouillage utilisé dans le cadre du projet Smartdrop. La puce (au centre du dispositif) ne peut être visualisée que par le dessus.

La solution précaire utilisant les aiguilles a permis de palier le manque durant les premiers mois d'expérience mais le positionnement des aiguilles sur les reprises de contact de la puce était long et fastidieux et l'instabilité du dispositif faisait craindre des court-circuits. Il a donc fallu concevoir et réaliser une connectique plus robuste et plus efficace permettant d'assurer le contact électrique avec la puce tout en autorisant la vue sur le côté. La connectique devait également être facilement et rapidement démontable en raison du changement régulier des puces. Une cuve avec parois en verre a donc été réalisée. Cette cuve a un double rôle : d'une part elle permet de réaliser des expériences sous huile¹ ; d'autre part elle sert de support à la connectique des puces : le fond de la cuve, en plexiglas, comporte un creuset aux dimensions de la puce ainsi que deux poutrelles cylindriques sur lesquelles vient coulisser la pièce connectique principale contenant des reprises de contact. Cette pièce se compose de pointes de contact et d'un circuit imprimé. Chaque fil de la nappe électrique est relié à une pointe, laquelle adresse le potentiel électrique à une électrode bien déterminée de la puce. Le support connectique ainsi réalisé est donné sur la figure 35.

¹ Une variante sans paroi a été réalisée afin d'éviter la réfraction de la nappe laser. Ce dispositif est utilisé pour les expériences de visualisation des écoulements sous air.

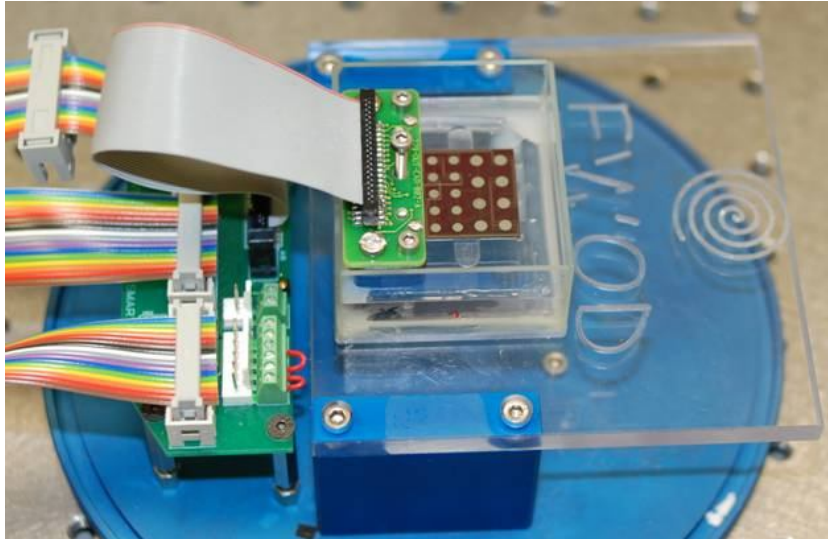


Fig. 35 Photo du banc d'électromouillage développé durant la thèse.

c. Acquisition d'images

Les expériences réalisées sont toutes basées sur l'analyse et le traitement d'images de goutte en configuration d'électromouillage. Cela démontre l'importance de se munir d'une optique de qualité adaptée aux dimensions et aux caractéristiques de nos expériences. Une caméra CCD (*PixelFly 200 XS*) est utilisée pour réaliser la capture d'images (640 x 480 pixels) et de vidéos. La sensibilité de la caméra (12 bits) s'avère suffisante, au vue de l'éclairage utilisé, pour délimiter le contour de la goutte et procéder à une analyse d'images. La caméra, reliée à l'ordinateur via un câble *Firewire*, est pilotable au choix avec le logiciel *Camware* fourni par le fournisseur, un *plug-in ImageJ* ou via un programme *Labview*.

Cette caméra a été ponctuellement remplacée (emprunt coûteux) par une caméra rapide CMOS (*Dalsa Global Shutter*) pour les expériences de vélocimétrie.

d. Source lumineuse pour les expériences d'électromouillage

Nous disposons de différentes sources de lumière adaptées chacune au type d'expérience que l'on désire réaliser. Ainsi, pour les expériences d'électromouillage, une source de lumière continue (*KL 15000 LCD*) est utilisée. L'emplacement de la source de lumière est primordial : il faut éviter les reflets sur le contour de la goutte sous peine d'avoir une image inexploitable pour la détection du contour et la mesure d'angle. Pour cette raison, la source de lumière est toujours placée en face de l'objectif et derrière la goutte de manière à produire un fond d'image claire et homogène tandis que la goutte apparaît en noir (Tab. 4).

e. Source lumineuse pour les expériences d'oscillations

Pour les expériences consistant à visualiser les oscillations de la goutte, la source de lumière continue est substituée par une diode électroluminescente faisant office d'éclairage stroboscopique. La stroboscopie est une méthode qui permet de visualiser un phénomène périodique que seules les caméras rapides pourraient visualiser autrement. Ce type d'éclairage permet donc de compenser les limitations d'une caméra classique en immobilisant ou en

ralentissant la dynamique d'un phénomène périodique tel que des oscillations de goutte. L'avantage majeur de la stroboscopie est son coût : elle ne nécessite en effet qu'une simple diode et une caméra standard. Nous ne sommes donc plus tributaires de la rapidité d'acquisition de la caméra, mais uniquement de l'éclairage de la diode. La caméra CCD fonctionne avec ses paramètres optimisés tandis que l'utilisation d'une caméra rapide oblige à un compromis entre la résolution des images et la rapidité d'acquisition. De plus l'utilisation d'une caméra rapide doit s'accompagner d'une source de lumière puissante afin de compenser le faible temps d'ouverture des capteurs. L'un des inconvénients de la stroboscopie en revanche est que le phénomène n'est pas observé en temps réel. Ceci empêche par exemple de suivre d'éventuels régimes transitoires. De plus, pour les expériences d'oscillations de gouttes sous air, la reconstitution d'une période d'oscillation nécessite un certain temps (3 à 6 minutes suivant le nombre de périodes d'oscillations décrites) durant lequel le rayon de la goutte diminue en raison de l'évaporation (Fig. 36). Pour limiter au maximum l'évaporation de la goutte, des gouttes sacrificielles (entre 6 à 10 gouttes) sont disposées autour de la goutte d'étude.

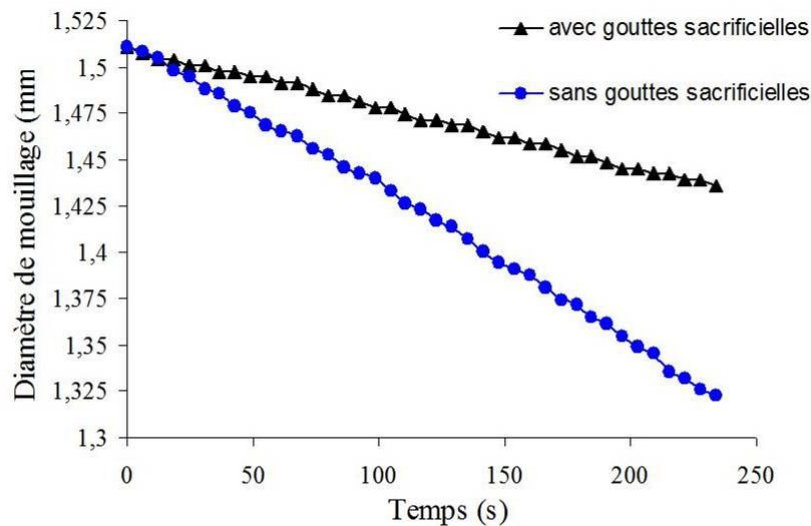


Fig. 36 Evolution du diamètre de mouillage de la goutte en fonction du temps avec et sans gouttes sacrificielle.

La méthode de stroboscopie avait déjà été réalisée dans le laboratoire pour mener une étude sur le déplacement de gouttes [Baviere, Boutet et al. 2008]. Nous avons donc pu bénéficier de précieux conseils afin reproduire cette technique d'observation. Le principe est de produire des éclairs lumineux intenses et succincts à intervalle de temps régulier. La diode est reliée à la deuxième sortie du générateur de fonction et est alimentée par une tension crête à crête d'amplitude maximale 20 Volts et dont le rapport cyclique défini comme le ratio entre la largeur du crête et la période totale du signal est de 5%. Cette valeur permet de créer une luminosité suffisante tout en garantissant un éclair suffisamment court pour observer des contours de gouttes de façon nette (Tab. 4). On note que bien que les phénomènes de mouillage en général soit des phénomènes capricieux, le fonctionnement du suivi des oscillations par stroboscopie prouve que les oscillations sont parfaitement périodiques.

f. Source lumineuse pour les expériences d'écoulement

Contrairement à la méthode de stroboscopie, la visualisation des écoulements à l'intérieur des gouttes a nécessité de mettre en œuvre une technique optique qui n'avait jamais été réalisée

dans notre laboratoire. Il a donc fallu développer un banc optique produisant une nappe laser traversant la goutte. Pour réaliser la nappe laser nous avons emprunté un module laser (*Melles Griot*) produisant un faisceau de puissance nominale 5 mW et de longueur d'onde 542 nm. Pour des raisons de sécurité, le faisceau en sortie de laser doit être atténué afin que sa puissance soit inférieure à 1 mW. Pour cela, une densité optique de 0,6 est placée en sortie du module. Une nappe laser est créée par une lentille cylindrique (distance focale 15 cm) placée en sortie de faisceau. Une seconde lentille cylindrique placée en série avec la première permet de refocaliser la nappe de manière à réduire son épaisseur. Le dispositif produit alors une nappe dont l'épaisseur est d'environ 100 μm et dont la hauteur est de 2 à 3 cm. La nappe laser traverse la goutte et éclaire des billes de polymère utilisées comme traceurs de l'écoulement. Bien que ces billes aient des propriétés de fluorescence, la longueur d'onde et la faible puissance du faisceau ne permettent pas d'exploiter ce phénomène optique. La visualisation des écoulements en nappe n'est donc pas une expérience utilisant la fluorescence, les billes sont éclairées dans le vert et visualisées comme n'importe quel traceur classique.

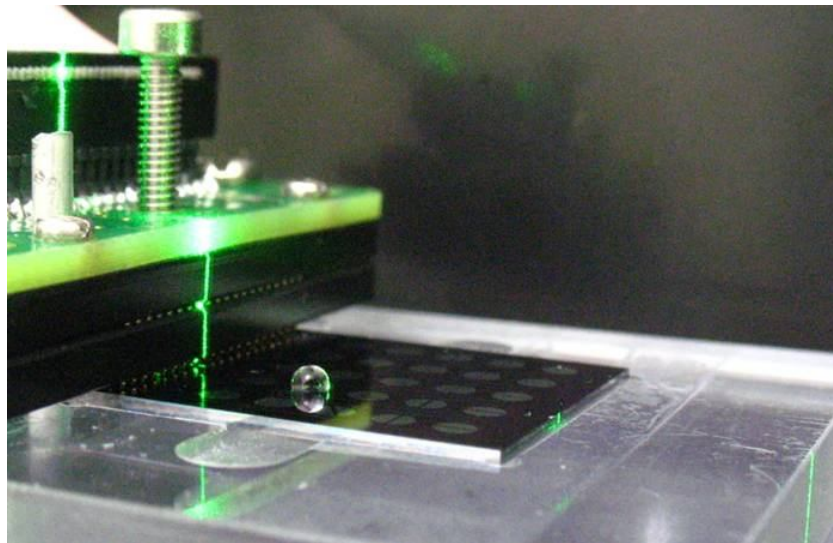
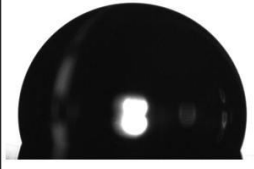
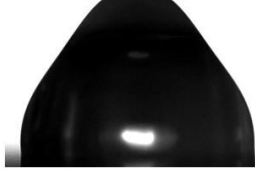
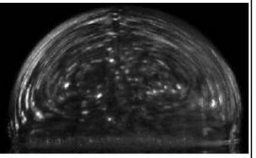
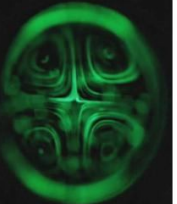


Fig. 37 Nappe laser traversant la goutte.

Le dispositif de nappe laser permet de visualiser les écoulements sur une tranche traversant le volume de la goutte et est donc bien adapté pour les écoulements axisymétriques. Pour des structures d'écoulement non axisymétriques, l'observation de la goutte par le dessus permet de donner de précieuses indications. Une binoculaire (*Zeiss Axioplan 2*) est alors placée au dessus de la goutte afin de visualiser l'écoulement de dessus. Une lampe mercure est incorporée dans le dispositif. Le spectre de lumière produit par la lampe étant suffisamment puissant, on peut réaliser les expériences en fluorescence en filtrant la lumière d'excitation dans le bleu (filtre FF01-479/40-25 *Semrock*) et la lumière d'émission dans le vert (filtre FF01-534/40-25 *Semrock*). On obtient alors une visualisation de l'écoulement en fluorescence suivant une vue de dessus.

Chaque expérience utilise donc sa propre source lumineuse et les différentes images obtenues sont rassemblées dans le tableau 4.

	Electromouillage	Oscillations	Ecoulement	
Eclairage	Lumière blanche	Stroboscopie	Nappe laser	Fluorescence
Images				

Tab. 4 Tableau récapitulatif des principales expériences réalisées.

2. Caractérisation des matériaux

a. Les liquides

Les premières expériences étaient réalisées avec de l'eau ultra-pure dont la conductivité électrique théorique est de $5,5 \mu\text{S/m}$. Cependant, cette conductivité électrique est très sensible à la pollution ou à la contamination par la surface de la puce et il est alors difficile de maîtriser ce paramètre. Nous avons donc opté pour l'utilisation d'une solution aqueuse pour laquelle les problèmes de contamination n'induisent pas de modification significative de la conductivité électrique. Les expériences sont donc réalisées avec une solution tampon PBS (*Phosphate Buffer Saline*). Le PBS est un tampon très largement utilisé en biologie car sa pression osmotique est identique à celle qui règne à l'intérieur des cellules. De part sa teneur en sels, le PBS possède une conductivité électrique σ élevée qui a été mesurée à $1,6 \text{ S/m}$.

Les expériences ont lieu sous air ou avec une phase ambiante liquide composée d'huile silicone (RT5, Paragon Scientific). Cette huile sert usuellement à étalonner les viscosimètres et possède une viscosité dynamique de $4,9 \text{ mPa.s}$. Ses propriétés de non-toxicité et de faible volatilité en font un milieu ambiant de choix utilisé dans le cadre du projet *Smartdrop*. Les propriétés des matériaux fluides utilisés lors des expériences sont résumées dans le tableau suivant :

	σ	ϵ	η	$\gamma \text{ (mN/m)}$	
Air		$\epsilon = 1 \epsilon_0$		$\gamma = 73$	
PBS	$\sigma = 1,6 \text{ S/m}$	$\epsilon = 78,5 \cdot \epsilon_0$	$\eta = 1 \text{ mPa.s}$		$\gamma = 28$
Huile silicone		$\epsilon \approx 2 \cdot \epsilon_0$	$\eta = 4,9 \text{ mPa.s}$		

Tab. 5 Propriétés des fluides utilisés lors des expériences.

L'huile et l'air sont considérés comme des milieux parfaitement diélectriques. Un appareil de mesure de tension de surface *Digidrop (GBX)* est utilisé pour estimer les tensions interfaciales du PBS avec l'air et avec l'huile silicone. La méthode utilisée est celle de la goutte pendante [Morga, Para et al.]. L'absence de tensioactifs dans le PBS se traduit par des tensions de surface avec l'air et avec l'huile égales à celles de l'eau dans l'air (73 mN/m) et de l'eau dans l'huile (28 mN/m).

b. Les traceurs

Afin de pouvoir visualiser l'écoulement, nous injectons dans la goutte des billes fluorescentes de la marque *Intertek* ayant un diamètre de 10 μm . Afin de ne pas modifier significativement la tension de surface des gouttes lors de l'ajout des billes, on les extrait préalablement de la solution mère, on les rince puis on les remet en suspension dans du PBS. La concentration en billes est de $3,6 \cdot 10^3$ billes/ μl et la tension de surface d'une goutte contenant 1,25 μl de PBS et 0,25 μl de PBS+ billes est 0,74 mN/m (+/- 3 mN/m), soit une tension de surface sensiblement identique à celle du PBS dans l'air. La densité des billes est de 1,05 ce qui signifie qu'elles ont tendance à sédimenter lorsque la goutte est au repos. La propriété de fluorescence des billes n'est exploitée que pour les visualisations de l'écoulement de dessus où la lumière filtrée est assez puissante pour exciter les fluorophores. Le spectre d'excitation et d'émission des traceurs est donné sur la figure 38.

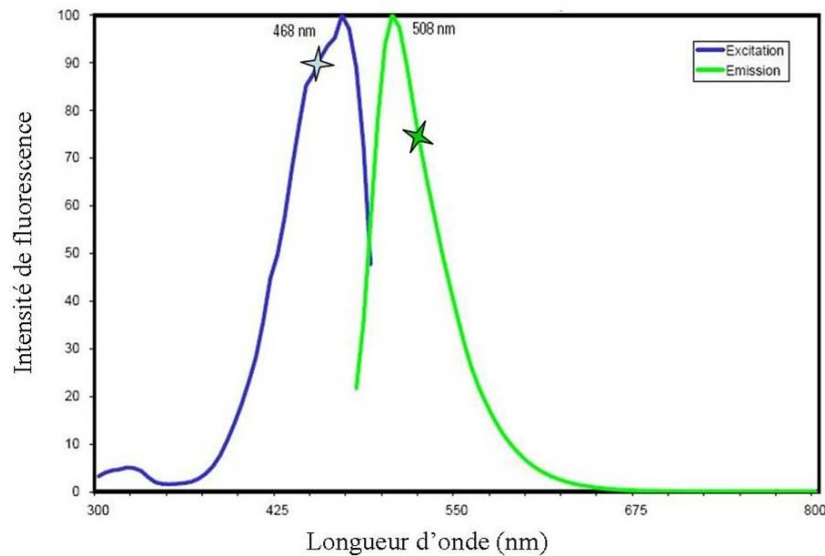


Fig. 38 Spectre d'excitation et d'émission des traceurs fluorescents. Les étoiles désignent les longueurs d'ondes auxquelles les traceurs ont été excités et observés durant les expériences.

3. Protocoles expérimentaux

Les trois principaux protocoles expérimentaux sont présentés dans ce paragraphe et seront rappelés par la suite dans chacune des parties correspondantes. Les expériences que nous réalisons peuvent être classées en trois catégories : les expériences relatives à l'électromouillage, celles relatives aux oscillations et enfin, les expériences centrées sur les recirculations hydrodynamiques. Sauf précision explicite, les expériences sont toutes réalisées avec une goutte de volume 1,5 μl . Ce choix est en réalité motivé par trois raisons :

La première est qu'avec une goutte de ce volume, quel que soit le milieu ambiant utilisé dans nos expériences, on reste dans le régime de capillarité.

La seconde est que le diamètre de mouillage de la goutte est inférieur au diamètre des électrodes que nous possédons et que par conséquent, la goutte ne recouvre jamais totalement l'intégralité de la surface des électrodes, ce qui perturberait son étalement (ce cas de figure se

présente néanmoins avec une géométrie d'électrodes rectangulaires que nous étudierons dans la partie C du chapitre 4).

Enfin la troisième raison est qu'avec des gouttes plus petites, son évaporation dans l'air serait plus rapide et perturberait davantage nos expériences.

a. Expérience d'électromouillage

L'expérience d'électromouillage consiste à suivre l'étalement de la goutte, caractérisé par son angle de contact en fonction du potentiel électrique appliqué. Une goutte de volume $1,5\mu\text{l}$ est déposée à la pipette sur la surface de la puce. Le générateur électrique délivre alors un signal alternatif d'une fréquence de 3 kHz. A cette fréquence, les oscillations de gouttes sont suffisamment faibles pour ne pas perturber la mesure d'angle d'autant plus qu'un éclairage continu est utilisé. L'amplitude du signal électrique augmente au fur et à mesure et pour chaque valeur de tension appliquée on suit l'évolution de l'angle de contact. Lorsque les images correspondantes au mouillage de la goutte à différentes valeurs de potentiel électrique sont prises, elles sont analysées afin de déduire l'angle de contact correspondant. Le résultat est alors interprété sous forme de courbes d'électromouillage.

b. Expérience d'oscillations

Nous reprenons le montage précédent ayant servi à réaliser les expériences d'électromouillage et nous l'adaptions afin de réaliser une étude sur les oscillations de gouttes. L'éclairage situé en arrière plan est remplacé par la diode afin de produire un éclairage stroboscopique. La goutte de $1,5\mu\text{l}$ de PBS est déposée à la pipette sur la surface de la puce. Le générateur de fonction délivre sur la voie 1 (alimentant la puce) une tension de 20 V amplifiée de manière à atteindre une tension de $91,7 V_{\text{eff}}$. Sur la voie 2 (alimentant l'éclairage stroboscopique) le générateur de fonction délivre une tension crête à crête de rapport cyclique 5% et de fréquence égale à la fréquence du signal alimentant la puce. Pour chaque fréquence étudiée, on fait varier le déphasage entre les deux signaux électriques et une image d'un profil instantané de la goutte est prise. Elle est alors analysée par le logiciel dédié afin de quantifier les paramètres d'oscillations (amplitude, mode d'oscillation, spectre...).

c. Expérience d'écoulement

L'objectif principal est d'étudier les écoulements qui apparaissent lorsque la goutte est activée avec un signal alternatif. Pour cela, les traceurs sont introduits dans la goutte et celle-ci est éclairée à l'aide de la nappe laser. En traversant la goutte, la nappe laser éclaire les traceurs et leur trajectoire peut ainsi être suivie sur l'écran de l'ordinateur. Un temps d'exposition long (supérieur à 100 ms) permet de visualiser les lignes de courant tandis qu'un temps d'exposition court (inférieur à 20 ms, utilisation d'une caméra rapide) permet de suivre la trajectoire individuelle des particules et ainsi de se livrer à des expériences de mesure de vitesse par micro-PIV (*Particle Image velocimetry*).

Le tableau ci-dessous (Tab. 6) résume les différentes expériences réalisées :

	Variable étudiée	Caméra	Paramètres électriques
Electromouillage	Angle de contact	CCD Pixelfly	Fréquence fixée tension variable
Oscillations	Profil de la goutte	CCD Pixelfly	Fréquence et tension fixées, déphasage sortie1-sortie2 variable
Ecoulement	Vitesse d'écoulement	CCD Pixelfly + Caméra rapide	Fréquence et tension fixées

Tab. 6 Tableau récapitulatif des différentes expériences réalisées.

Partie C : Réalisation de logiciels de pilotage et d'analyse des expériences

1. Motivations et enjeux

a. Nécessité d'automatiser les protocoles

Les expériences d'électromouillage et d'oscillations consistent tout simplement à incrémenter la tension et le déphasage respectivement et à prendre une image de la goutte. La réalisation manuelle de ces actions est laborieuse et répétitive. De plus, elles mobilisent l'expérimentateur durant toute la durée de l'expérience. Il nous a donc semblé indispensable d'automatiser l'expérience afin d'accélérer les protocoles, de les rendre plus reproductibles et d'augmenter le nombre d'expériences réalisables.

b. Nécessité du développement d'outils d'analyse

En automatisant la chaîne d'acquisition expérimentale, on génère rapidement de grandes quantités de données expérimentales qui se présentent sous forme de séries d'images qu'il faut analyser afin de déterminer les paramètres clés tels que l'angle de contact, le diamètre de mouillage ou encore les modes d'oscillations de la goutte. L'analyse de chacune des expériences peut alors s'avérer particulièrement fastidieuse. En effet, une expérience d'électromouillage comporte une vingtaine d'images à analyser tandis qu'une expérience d'oscillations peut en comporter jusqu'à 144. Jusqu'ici, une utilisation détournée du logiciel fourni avec le banc *Digidrop* (banc de caractérisation du mouillage et de mesure de tension de surface) permettait d'analyser les expériences d'électromouillage réalisées dans le laboratoire. La mesure d'angle n'étant pas automatisée, chaque image devait alors être chargée une à une puis pour chacune d'elle l'opérateur cliquait sur les points triples et le sommet de la goutte afin de lire l'angle de contact. L'analyse d'une expérience d'électromouillage et la réalisation des courbes d'électromouillage nécessitait environ 1 h. De plus, nous n'avions aucun outil adapté à l'analyse des profils de gouttes oscillantes : la technique de mesure d'angle du logiciel *Digidrop* n'est en effet pas adaptée aux profils non sphériques. Le logiciel ne permet pas non plus de quantifier l'amplitude d'oscillation de la goutte ou d'identifier le mode d'oscillation.

Il y avait donc une nécessité d'une part d'accélérer l'analyse des expériences d'électromouillage, d'autre part de développer un outil de caractérisation des oscillations de goutte. Pour ces raisons, nous avons développé des logiciels intégrant des programmes de pilotage du banc sous *Labview* et d'analyse sous *Matlab*. La réalisation de ces logiciels associée au banc et à la connectique adaptée permet par ailleurs d'équiper le laboratoire d'une plateforme de caractérisation pour l'électromouillage. La caractérisation du SiOC et la tenue des puces sont autant de paramètres importants qui nécessitent l'utilisation d'un banc et de

logiciels adaptés. Nous présentons ici brièvement les logiciels qui ont été développés à ces fins ainsi que les principes sur lesquels ils reposent.

2. Logiciel dédié à l'électromouillage : *Easy-EWOD*

Le logiciel *Easy-EWOD* dédié à l'électromouillage se compose de deux interfaces, l'une dédiée au pilotage du banc et l'autre à l'analyse des images. Leur fonctionnement global est ici présenté.

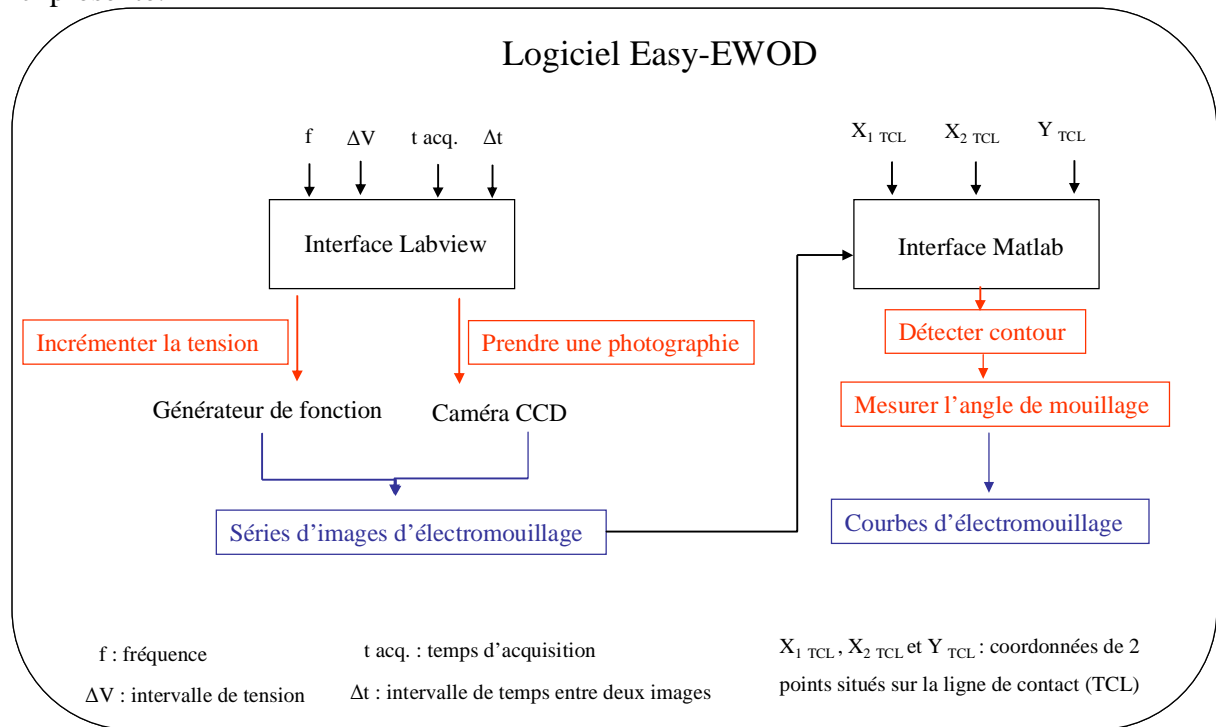


Fig. 39 Principe de fonctionnement du logiciel *Easy-EWOD*.

a. Pilotage du banc

Un programme de pilotage développé sur *Labview* permet de commander la caméra *Pixelfly* et le générateur de fonction *Yokogawa*. Une carte d'acquisition dédiée à la caméra permet de faciliter son pilotage. Le générateur de fonction est quant à lui piloté via un port *GPIB*. Le langage propre du générateur de fonction est fourni par sa documentation. Un sous-programme permettant de prendre une photo avec la caméra est incorporé dans une boucle portant sur la tension délivrée par le générateur de fonction. Le schéma de principe du programme est donné sur la figure 39.

b. Analyse des images

Chaque image issue de l'expérience d'électromouillage est traitée à l'aide d'un logiciel réalisé sous l'environnement *Matlab*. La programmation du logiciel fait appel à la boîte à outils de traitement d'images.

Pour chaque image une détection de bord permet de repérer le contour de la goutte et de stocker les coordonnées du profil dans une matrice. A partir de cette matrice de coordonnées on déduit aisément le rayon de mouillage de la goutte et sa hauteur. L'angle de contact est alors calculé par 'la méthode de l'angle inscrit' dans le cercle (Fig. 40) en supposant que la goutte est une calotte sphérique (régime capillaire).

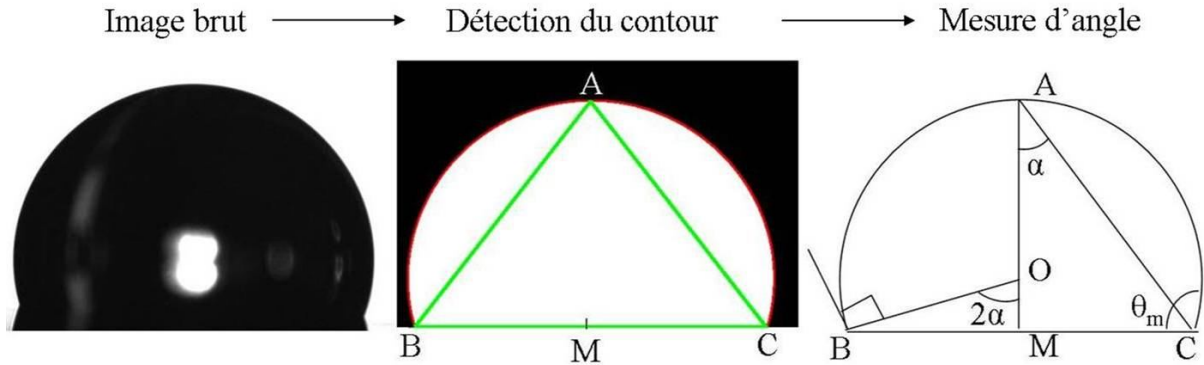


Fig. 40 Etapes nécessaires à la mesure d'angle en électromouillage.

Les longueurs AM, BC et BM sont déduites de l'analyse d'image, M étant le milieu du segment BC.

Dans le triangle AMC, l'angle α est donné par l'expression :

$$\alpha = \text{atan}\left(\frac{CM}{AM}\right). \quad (76)$$

De plus, le triangle BOC, O étant le centre du cercle, intercepte le même arc de cercle que le triangle BAC. L'angle au sommet \hat{BOC} est donc égal au double de l'angle \hat{BAC} (hypothèse de calotte circulaire).

Enfin, l'angle de mouillage θ_m est égal à :

$$\theta_m = \frac{\pi}{2} + \left(\frac{\pi}{2} - 2\alpha\right) = \pi - 2\alpha, \quad (77)$$

$$\theta_m = \pi - 2\text{atan}\left(\frac{CM}{AM}\right). \quad (78)$$

L'erreur de mesure sur l'angle de mouillage est alors de l'ordre de 1° .

c. Evaluation de la précision de mesure

Afin d'évaluer la précision de la méthode de mesure nous créons deux calottes sphériques d'angle de contact 90° et 130° respectivement à l'aide d'un logiciel de dessin. Les images sont alors analysées à l'aide du logiciel *Easy-Ewod* et la mesure d'angle de contact est comparée à la valeur exacte.

Pour la goutte faisant un angle de contact de 90° , le logiciel mesure un angle de $89,8^\circ$. Pour celle faisant un angle de 130° , le logiciel mesure une valeur de $130,1^\circ$. Ainsi, l'erreur de mesure du logiciel est inférieure à 1° . Ceci n'est pas étonnant car cette méthode de mesure d'angle repose sur la mesure de longueurs macroscopiques (à l'échelle de la goutte) telle que le diamètre de mouillage et la hauteur de la goutte et sur lesquels l'erreur de mesure est relativement faible. Néanmoins, comme expliqué en Annexe 1, l'utilisateur indique pour la première image la position de la ligne de contact. En fonction des images, il est parfois

difficile de positionner exactement la ligne de contact et une erreur de quelques pixels (soit 3 μm environ) peut alors être commise. L'erreur commise sur la mesure d'angle reste néanmoins inférieure à 1° .

3. Logiciel dédié aux oscillations : *Oscill-EWOD*

Une variante du logiciel *Easy-EWOD* a été réalisée pour les expériences d'oscillations de goutte (Fig. 41).

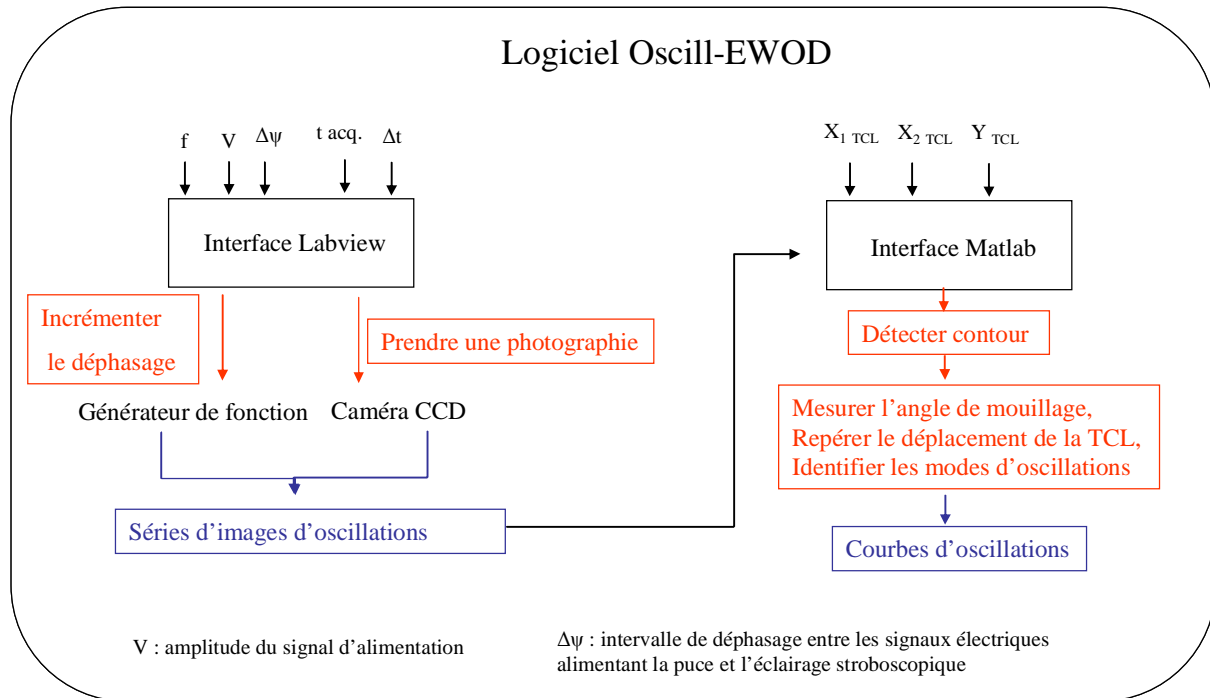


Fig. 41 Principe de fonctionnement du logiciel *Oscill-EWOD*.

a. Pilotage du banc

Le programme de pilotage du banc pour les expériences d'électromouillage est adapté à la réalisation des expériences d'oscillations. Le principe de fonctionnement du logiciel est le même à la différence que l'incrémention porte alors sur le déphasage entre le signal électrique alimentant la puce et celui alimentant l'éclairage stroboscopique. L'interface du programme est représentée sur la figure 42. Elle comporte deux parties et une fenêtre d'affichage permettant de visualiser les images prises. Dans la première partie l'utilisateur saisit les paramètres relatifs au générateur de fonction (tension d'activation, fréquence...). La seconde partie concerne les paramètres de la caméra (temps d'acquisition, gain...). Lorsque les périodes d'oscillations ont été entièrement décrites pour une fréquence donnée, la fréquence est incrémentée et l'expérience est répétée. Le programme permet ainsi un double balayage portant sur le déphasage électrique afin de décrire les périodes d'oscillations de la goutte et sur la fréquence des signaux afin de décrire les différents modes d'oscillations ce qui s'avère très utile notamment pour les expériences sous huile pour lesquelles l'évaporation de la goutte n'intervient pas et où des expériences d'oscillations très longues peuvent être réalisées de manière automatique [Malk, Davoust et al. 2010].

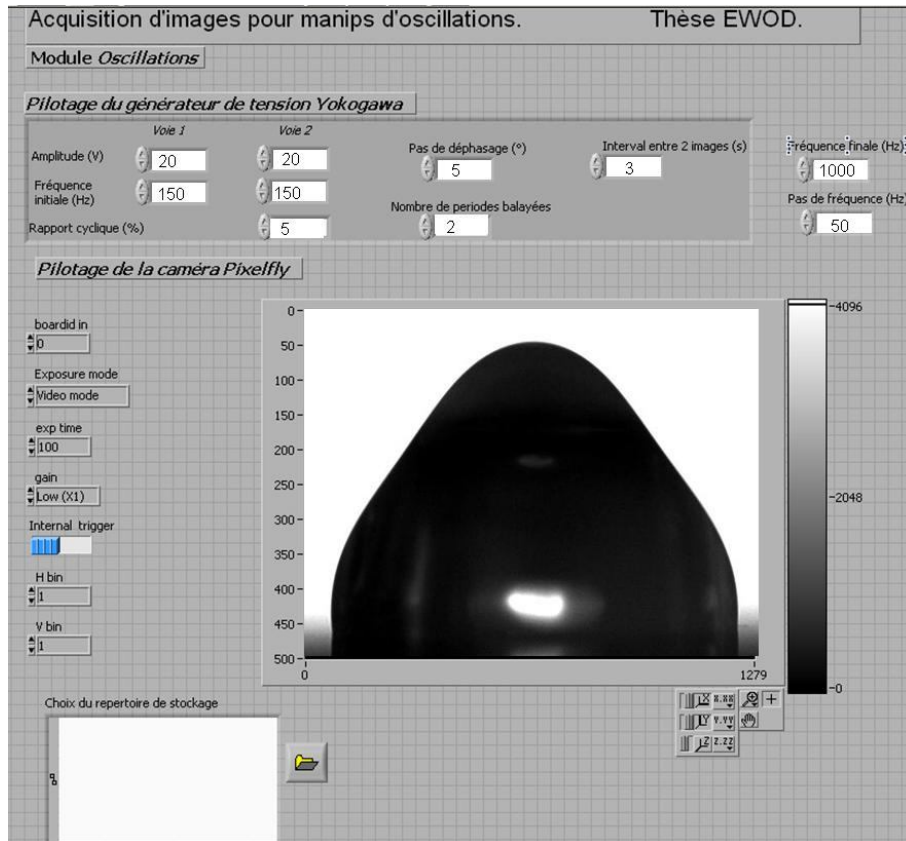


Fig. 42 Interface de pilotage du banc expérimental pour le logiciel *Oscill-EWOD*.

b. Analyse des images

A l'issue des expériences d'oscillations, les différents profils de goutte doivent être analysés afin de déterminer l'angle de mouillage, mais aussi l'amplitude d'oscillation de la ligne de contact et l'identification du mode d'oscillation.

La détection du contour de la goutte permet de repérer la position de la ligne de contact qui est donnée par l'évolution du rayon de mouillage de la goutte.

L'identification des modes oscillants est réalisée en utilisant des polynômes de Legendre. L'utilisation de cette base de polynômes sera justifiée dans la partie relative à l'étude des oscillations. En combinant les polynômes de Legendre, le logiciel calcule le profil qui correspond le mieux au contour de la goutte. Le calcul itératif est basé sur la méthode des moindres carrés. Une fois que le calcul a convergé, le logiciel fournit les amplitudes de chacun des polynômes lesquels correspondent à différents modes d'oscillations.

Pour l'estimation de l'angle de contact, la méthode de mesure précédente (équation (78)) ne peut plus être utilisée car l'hypothèse de calotte sphérique est mise à défaut. Il a donc fallu développer une méthode de mesure permettant d'évaluer rapidement l'angle de contact avec une précision acceptable. La méthode retenue que nous appellerons 'méthode de la tangente' pour simplifier, consiste à mesurer l'angle formé entre la base de la goutte et une droite portée par un segment de profil adjacent au point triple (Fig. 43). La longueur du segment est suffisamment petite pour se rapprocher au maximum de la droite tangente². Néanmoins, afin de minimiser l'erreur induite par la pixellisation du contour, le segment de

² La détermination de la droite tangente au profil a posé des problèmes en raison de la pixellisation du contour de la goutte.

profil ne doit pas être trop court. Pour des segments de profil de quelques dizaines de micromètres, la mesure d'angle est à peu près constante mais pour des longueurs supérieures à la centaine de nanomètres, la courbure du profil induit des écarts de valeur importants. On reste alors sur des segments de 30 μm correspondant à une dizaine de pixel et donnant ainsi le meilleur compromis. La précision de la valeur est évaluée ci-dessous.



Fig. 43 Méthode de mesure d'angle utilisée pour les gouttes en oscillation.

c. Evaluation de la précision de mesure

Compte-tenu du grossissement des images, la taille des pixels est d'environ 3 μm . Si l'opérateur positionne correctement la ligne de contact sur la première image, la détection du contour repère la base de la goutte à 1 ou 2 pixels près, soit une précision sur le rayon de mouillage de l'ordre de 3 à 6 μm .

La précision sur l'identification de modes et l'amplitude d'oscillation relève de la méthode des moindres carrés, laquelle peut être facilement paramétrée sous environnement *Matlab*. En autorisant un nombre maximal de 10^9 itérations, la méthode converge systématiquement et la distance euclidienne entre le profil calculé et le profil expérimental est de l'ordre de la dizaine de micromètres. On peut donc estimer que le logiciel calcule correctement les amplitudes les d'oscillations de la goutte.

Contrairement à la méthode de l'angle inscrit qui dépend des mesures de grandeurs macroscopiques, la méthode de la tangente est une technique de mesure localisée et repose sur le profil de la goutte aux abords des points triples. La pixellisation du contour ainsi que la variation de courbure parfois rapide du profil près du plan de mouillage expliquent que l'erreur de mesure soit plus grande avec cette méthode. En comparant l'angle de contact mesuré par cette méthode avec celui prédit par la méthode de l'angle inscrit sur des calottes sphérique, on se rend compte que la méthode basée sur le profil de goutte présente des écarts de valeur allant jusqu'à 4° . L'erreur sur la mesure d'angle est donc plus grande mais la précision reste néanmoins comparable à la méthode manuelle de mesure d'angle sur *ImageJ*. Etant donnée la précision de la méthode, la mesure d'angle dynamique en régime oscillatoire n'est utilisée qu'à titre indicatif afin de comparer deux régimes d'oscillation mais pour des données quantitatives plus fiables sur les oscillations, les paramètres à retenir sont les amplitudes de déplacement de la ligne de contact et les coefficients des différents modes d'oscillations.

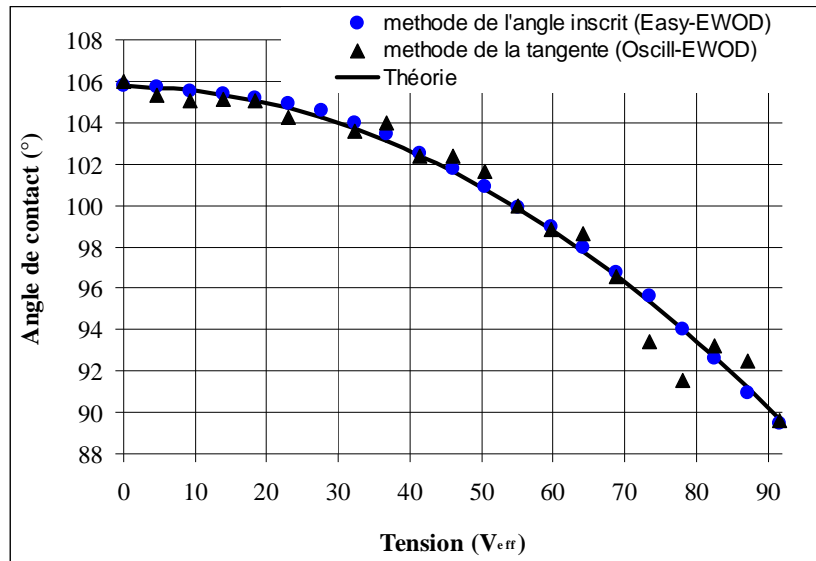


Fig. 44 Comparaison des deux méthodes de mesures d'angle de contact telles que réalisées par les logiciels *Easy-EWOD* et *Oscill-EWOD*.

En résumé, ces logiciels permettent de tracer les courbes d'électromouillage (Fig. 45(a)), d'analyser les différents profils de goutte pris lors d'un cycle d'oscillations (Fig. 45(b)), d'identifier les modes oscillants ou encore de mesurer les amplitudes relatives à chacun de ces modes (Fig. 45(c)), ceci de manière entièrement automatisée.

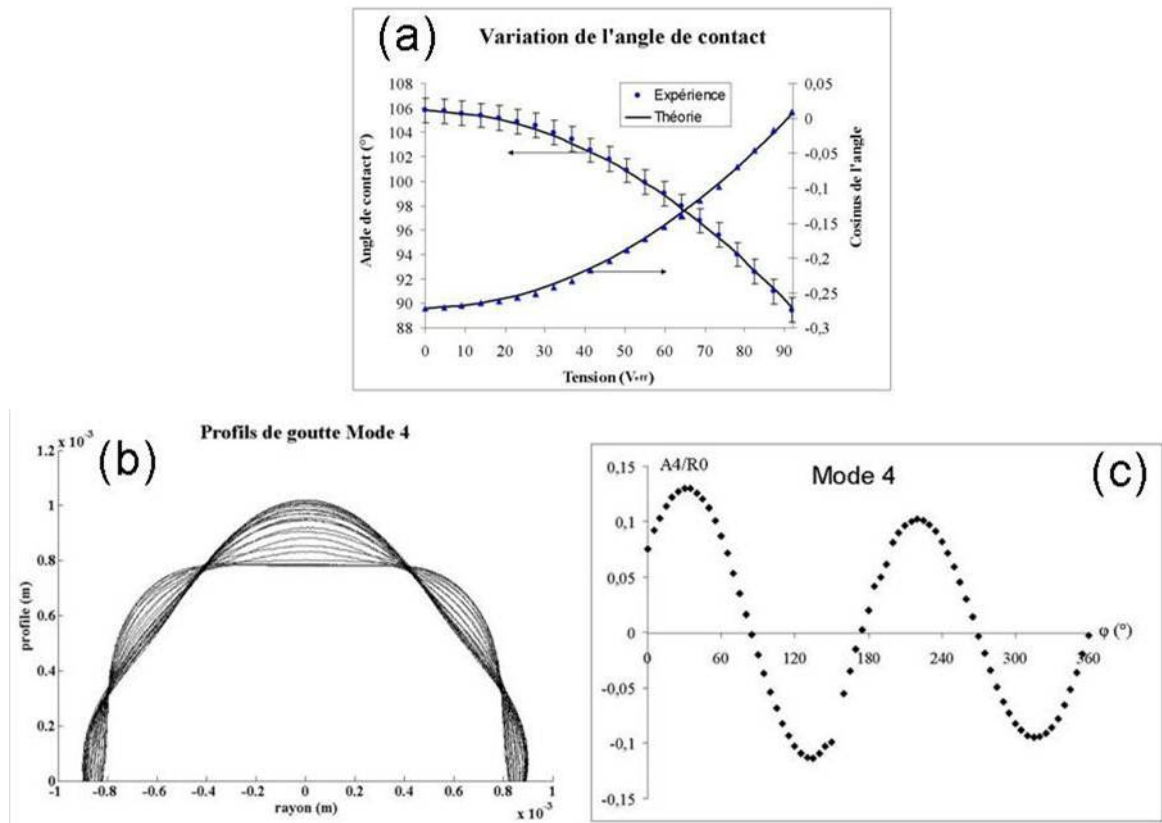


Fig. 45 Exemples de résultats fournis par les logiciels *Easy-EWOD* et *Oscill-EWOD*. (a) Courbes d'électromouillage obtenue pour une fréquence de 3 kHz ; (b) Profils et (c) amplitudes d'oscillations pour le mode radial 4 . La fréquence du signal électrique d'actuation est de 216 Hz.

4. Les expériences d'écoulement

Jusqu'ici nous n'avons évoqué que les logiciels dédiés à l'électromouillage et aux expériences d'oscillations car il s'agit des logiciels que nous avons développés et sans lesquels l'étude aurait été beaucoup plus fastidieuse. Pour les expériences d'écoulement, nous avons eu la possibilité d'emprunter un logiciel de micro-*PIV* permettant d'analyser l'écoulement et de repérer le déplacement des particules [Lu, Bottausci et al. 2008]. Néanmoins son utilisation pour les expériences en goutte a été limitée pour la raison suivante : le logiciel n'intègre pas la correction optique nécessaire dès lors qu'une interface courbée vient déformer les distances dans l'image, ce qui est le cas avec une goutte en configuration ouverte. On réserve alors son utilisation au cas où l'interface liquide est plane (Partie B du chapitre 5) et où des expériences sont menées en configuration fermée. Pour les mesures de vitesse en goutte en configuration ouverte, nous analysons les images sur *ImageJ* et utilisons le *plug-in* '*PointPicker*' adapté au repérage de particules dans un écoulement. La correction optique est alors apportée et son détail est donné par la suite (Chapitre 4 partie B).

Conclusion du chapitre 2 :

Cette partie a permis de mettre en évidence les problématiques relatives à la réalisation des expériences et à leur analyse. Les difficultés expérimentales ont été mises en avant et les solutions retenues expliquées.

Dans la **partie A**, les caractéristiques nécessaires au bon fonctionnement des puces à électromouillage ont été exposées. Le suivi de fabrication des deux lots de puces réalisés durant la thèse s'est en particulier focalisé sur le fonctionnement en salle blanche ainsi que les procédés de fabrication standards utilisés dans le laboratoire. Grâce aux moyens mis à disposition, un nombre suffisant de composants a été produit pour assurer le bon fonctionnement des expériences tout au long de la thèse et le dessin des différentes géométries d'électrodes a permis de sélectionner certains motifs d'étude représentatifs des principaux phénomènes observés.

La **partie B** a permis de présenter les différents composants du banc expérimental. Le choix des composants et des méthodes utilisés a été exposé. Certains problèmes liés à la connectique électrique des puces ont conduit à la réalisation d'une nouvelle connectique mieux adaptée à la visualisation de profil. Les matériaux fluides utilisés ont été caractérisés et la mise en œuvre de différentes méthodes optiques a permis de développer des protocoles expérimentaux adaptés. Ainsi, l'éclairage en lumière continue permet d'étudier l'angle de contact lors des expériences d'électromouillage. L'éclairage en lumière stroboscopique permet d'étudier le phénomène d'oscillation à partir de la caméra CCD dont nous disposons tandis que l'éclairage en nappe laser et l'utilisation d'une binoculaire permettent de visualiser les écoulements en volume et en surface respectivement.

Dans la **partie C**, les raisons qui ont motivé le développement des logiciels d'analyse et de pilotage du banc sont exposées. Deux logiciels ont été réalisés afin d'automatiser entièrement les protocoles expérimentaux et l'analyse des résultats. Le logiciel *Easy-EWOD* permet ainsi la réalisation des expériences d'électromouillage et le tracé des courbes correspondantes. Son fonctionnement est détaillé et sa méthode de mesure permet de fournir des valeurs d'angle avec une précision de l'ordre de 1° en régime statique. Le logiciel *Oscill-EWOD* reprend la même philosophie en automatisant les expériences d'oscillations. La série d'images est alors analysée afin d'identifier les modes d'oscillations et de mesurer les amplitudes de déplacement de la ligne de contact avec une précision de quelques micromètres (5 à 6 μm). La méthode de mesure d'angle dynamique reste à perfectionner afin d'améliorer la précision de mesure estimée à 5° . Un logiciel de vélocimétrie par imagerie été emprunté mais son utilisation demeure limitée à des écoulements lents et non déformés par un effet de lentille créé par une interface fluide courbée. Si tel est le cas, les mesures de vitesse sont réalisées manuellement sous *Image J*.

CHAPITRE 3 : Electromouillage et contraintes électriques de surface

Ce chapitre est consacré à l'électromouillage d'une goutte sur diélectrique. Ce phénomène physique est à la base de recirculations hydrodynamiques. Son étude en configuration coplanaire représente donc une étape vers la compréhension du phénomène d'écoulement.

Dans la **partie A**, une étude expérimentale est entreprise dans la configuration à électrodes coplanaires. L'intérêt de cette étude est multiple : outre la validation du banc de caractérisation et des propriétés d'électromouillage de nos puces, elle permet de définir les paramètres expérimentaux retenus pour la suite.

Dans la **partie B** on a recours à la simulation numérique qui a pour but d'estimer localement les valeurs de champ électrique et donc de caractériser et d'évaluer la répartition des contraintes électriques à la surface de la goutte. L'objectif principal est d'examiner les conditions pour lesquelles des contraintes électriques tangentielles peuvent être à l'origine des recirculations. Pour cela, un modèle est mis en place et résolu par la méthode des éléments finis. Avant d'être utilisé dans la partie qui suit, le modèle est validé en comparant ses sorties numériques aux valeurs expérimentales de la partie A. Les difficultés qui limitent sa portée sont mises en évidence.

Dans la **partie C**, le modèle précédent est repris afin de calculer la contrainte électrique tangentielle en électromouillage. Il s'agit là d'une contrainte électrohydrodynamique dont la portée n'a jamais été réellement étudiée en électromouillage, donnée qui n'a jamais été réellement étudiée dans la littérature. Notre approche commence par la mise en place de l'expérience de Taylor-Melcher qui met explicitement en jeu la contrainte électrique tangentielle. On modifie certaines conditions expérimentales de l'expérience afin de tendre vers les conditions réelles de l'électromouillage. Les résultats expérimentaux sur l'expérience de Taylor-Melcher modifiée et les calculs numériques en goutte permettent de conclure quand à l'implication des contraintes tangentielles en électromouillage.

Partie A : Observations expérimentales en électromouillage

1. Protocole expérimental

Pour les expériences réalisées dans l'air, une lubrification de la surface de la puce avec un film d'huile est au préalable réalisée. Un volume de $0,1 \mu\text{l}$ d'huile silicone est déposé sur la surface de la puce. L'huile s'étale sur la surface hydrophobe et en couvre l'intégralité au bout de quelques minutes. Du papier absorbant est ensuite délicatement passé au dessus du motif d'électrode pour affiner davantage le film. L'étape de lubrification est systématique avant toute expérience. Son importance sera soulignée dans le chapitre suivant tandis que son influence sur les expériences d'électromouillage est négligeable comme nous allons le voir. La procédure que nous avons suivie pour réaliser les expériences d'électromouillage est semblable à celle décrite par Berry et *al.* (2006) :

- i) La goutte est déposée sur la surface de la puce avec une pipette.
- ii) Puis la tension électrique alternative est appliquée et une image de la goutte est prise. Un intervalle d'une à deux secondes est respecté entre ces deux actions afin de permettre à la goutte de se stabiliser avant la prise d'image.
- iii) Enfin, la tension électrique est remise à zéro, incrémentée puis appliquée à nouveau au système. Cette étape est sensée réduire l'effet de l'hystérésis de l'angle de contact, cependant, comme nous allons le voir cette mesure ne suffit pas à supprimer l'influence de ce dernier.

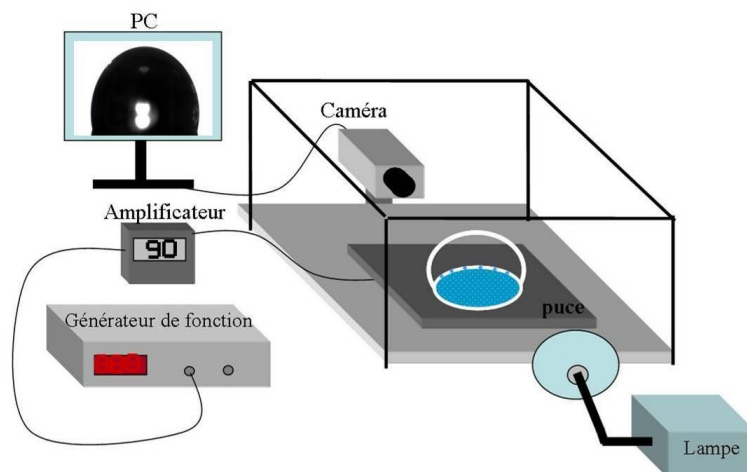


Fig. 46 Schéma du montage expérimental pour l'expérience d'électromouillage. La tension électrique varie de 0 à $91,7 \text{ V}_{\text{eff}}$ tandis que la fréquence du signal est fixée à 3 kHz.

Dans ce chapitre, consacré aux expériences d'électromouillage en configuration coplanaire, le motif d'électrodes référence utilisé et la direction d'observation (en l'absence de toute autre indication) sont représentés sur la figure 47 :

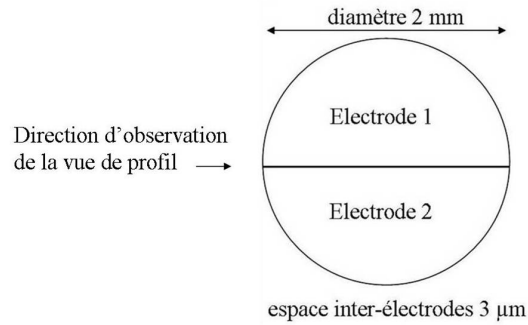


Fig. 47 Motif d'électrodes et direction d'observation utilisés pour les expériences d'électromouillage.

2. Electromouillage en configuration coplanaire

a. Impact de l'évaporation de la goutte sous air

Lorsque l'expérience se déroule dans l'air, la goutte de PBS s'évapore au bout de quelques minutes. Bien que l'angle de contact dans le régime capillaire ne dépende pas du volume de la goutte, nous vérifions que le processus d'évaporation n'entraîne pas de modification significative de l'angle de contact ; la situation que l'on peut craindre est que la ligne de contact s'immobilise sur des impuretés ou des défauts de mouillage alors que la goutte continue à s'évaporer dans le même temps. Dans ce cas, la hauteur de la goutte diminuerait tandis que sa section de mouillage resterait constante ce qui entraînerait une diminution de l'angle de contact.

Pour vérifier si cette situation se produit nous mesurons l'angle de contact de la goutte au cours de son évaporation. Une mesure d'angle est faite toutes les 5 secondes durant environ 4 minutes et les valeurs sont tracées sur la figure 48.

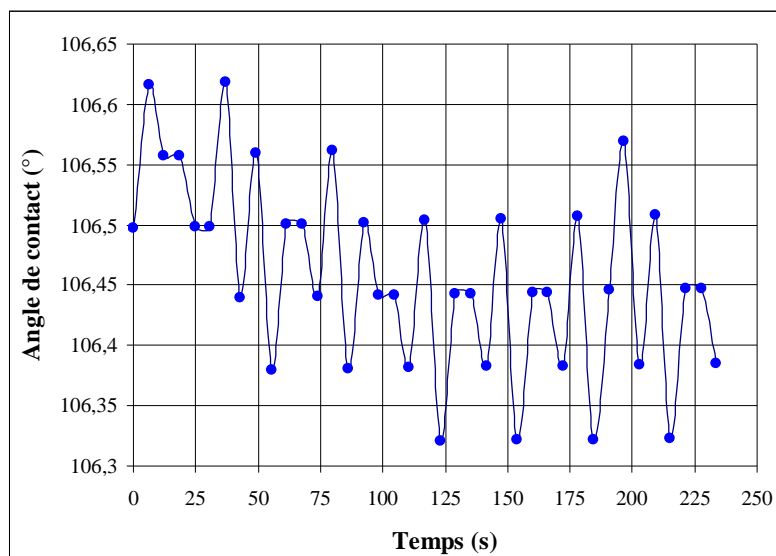


Fig. 48 Mesure de l'angle de mouillage d'une goutte de volume initiale de 1,5 μl au cours de l'évaporation. En fin d'expérience, la goutte a un volume de 0,9 μl .

L'allure oscillante de la courbe s'explique volontiers par une série d'accrochages et décrochages successifs de la ligne de contact lors de son mouvement de recul. Néanmoins, le

piégeage de la ligne de contact n'est pas suffisamment robuste pour modifier de manière significative l'angle de mouillage : tout au long de l'expérience, la variation totale de l'angle de contact sur une durée largement supérieure à la durée nécessaire pour réaliser une expérience d'électromouillage dans l'air (100 secondes environ) est inférieure à la précision de la technique de mesure (1°). Par conséquent, on ne peut pas considérer que les expériences d'électromouillage soient affectées par l'évaporation de la goutte.

b. Electromouillage d'une goutte de PBS dans l'air

Trois images sont représentées sur la figure 49 pour illustrer l'étalement d'une goutte de 1,5 µl de PBS sous l'effet de l'électromouillage. L'angle de contact initial est de 105,8°. En appliquant le signal électrique aux électrodes, l'angle de mouillage diminue progressivement jusqu'à atteindre la valeur de 89,4° à 91,7 V_{eff}.

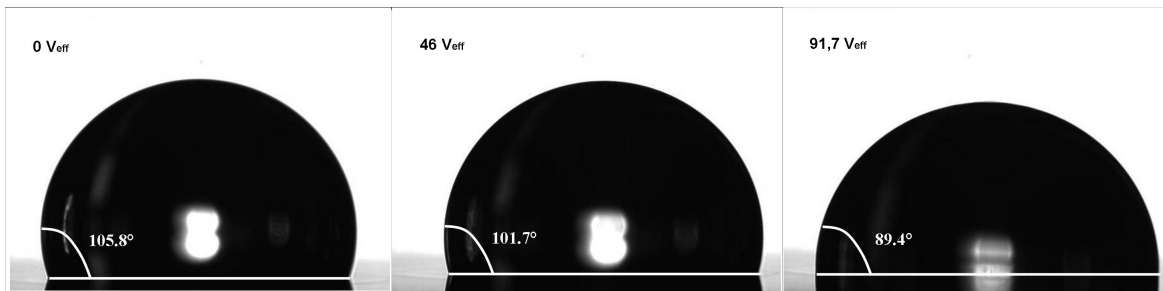


Fig. 49 Etalement d'une goutte de PBS sous l'effet de la tension électrique.

On rappelle que l'électromouillage est gouverné par la loi de Berge qui s'écrit (équation (74)):

$$\cos(\theta_m) = \cos(\theta_0) + \frac{CV_{eff}^2}{8\gamma}.$$

Le second terme du membre de droite est le nombre d'électromouillage N_{EM} qui mesure le rapport entre la tension effective d'électromouillage T_{EM} et la tension de surface de la goutte γ.

Dans notre cas, la capacité électrique C de la puce est créée par superposition de la couche d'isolant (Si₃N₄) et de la couche hydrophobe (SiOC). Ces deux couches agissent comme un montage capacitif en série. On peut donc écrire :

$$\frac{1}{C} = \frac{1}{C_{Si3N4}} + \frac{1}{C_{SiOC}} = \frac{\epsilon_{Si3N4}}{d_{Si3N4}} + \frac{\epsilon_{SiOC}}{d_{SiOC}}, \tag{79}$$

$$C = \frac{\epsilon_{Si3N4}\epsilon_{SiOC}}{\epsilon_{SiOC}d_{Si3N4} + \epsilon_{Si3N4}d_{SiOC}}. \tag{80}$$

La courbe représentée sur la figure 50 permet de visualiser l'évolution de l'angle de contact pour les différentes valeurs de tension électrique. La courbe suit une loi en forme de parabole y compris lorsque la tension est élevée. Ceci permet d'affirmer qu'il n'y a pas de phénomène de saturation de l'angle de contact dans la gamme de tension que nous utilisons.

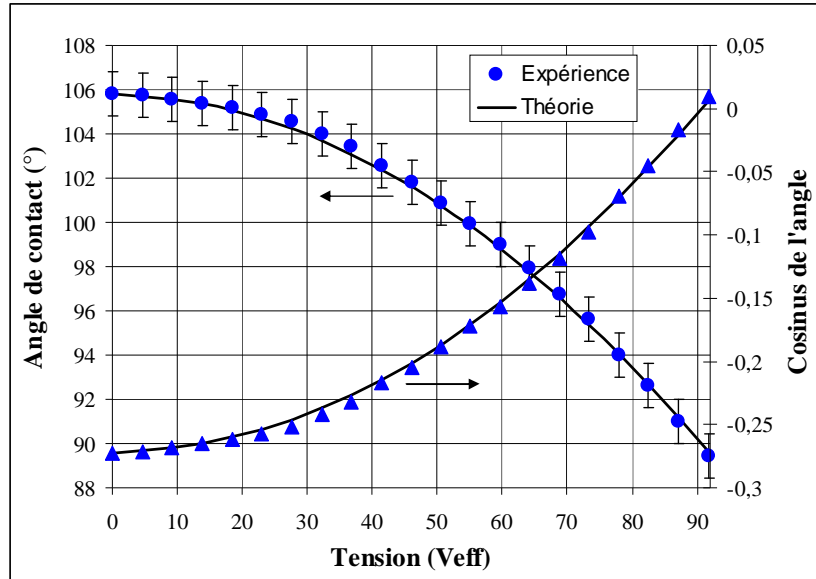


Fig. 50 Courbes d'électromouillage d'une goutte de PBS dans l'air.

La comparaison avec la loi de Berge montre des écarts inférieurs à 1° commensurables avec l'incertitude de mesure. Etant donné que les propriétés de chacune des couches diélectriques interviennent dans la courbe théorique, les valeurs qui ont été données dans le tableau 3 peuvent donc être validées.

Par ailleurs, les courbes de la figure 50 montrent qu'avec un espace inter-électrodes réduit à 3µm, l'électromouillage se produit conformément à la loi de Berge et que son influence sur l'angle de mouillage de la goutte est négligeable. De plus, l'observation de la goutte suivant les directions parallèles et orthogonales à l'espace inter-électrodes ne fait apparaître aucune différence notable ; la goutte s'étale de manière axisymétrique. Nous verrons par la suite qu'un espace inter-électrodes trop grand peut déformer localement la goutte et rompre l'axisymétrie de mouillage dans certaines conditions (chapitre 5 partie A).

Enfin, la tension effective d'électromouillage moyenne (équation (81)) se déduit directement des mesures d'angle :

$$\langle T_{EM} \rangle = \frac{1}{2} CV_{eff}^2 = \gamma(\cos(\theta_0) - \cos(\theta_m)). \quad (81)$$

La bonne correspondance entre les pentes des données expérimentales et théoriques (Fig. 51) signifie que la lubrification de la surface de la puce n'introduit aucune capacité électrique 'parasite' significative. Autrement dit, le champ électrique traversant le film d'huile est négligeable en comparaison avec celui traversant les couches diélectriques : la lubrification n'affecte donc pas les mesures d'électromouillage.

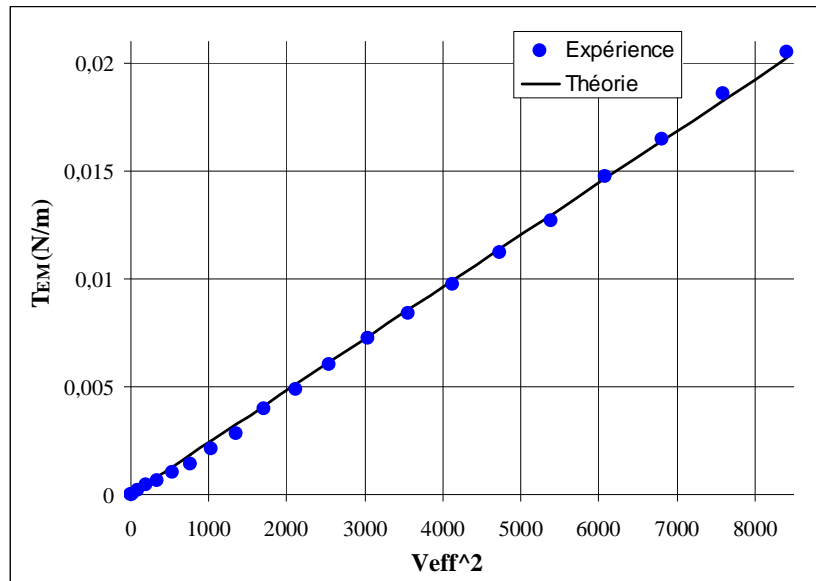


Fig. 51 Tension effective d'électromouillage moyenne : comparaison expérience-théorie.

c. Répétabilité des expériences d'électromouillage sous air

L'expérience affiche une bonne répétabilité si l'on tient compte de l'hystérésis de l'angle de contact (Fig. 52). L'hystérésis maximale, mesurée avec la méthode du plan incliné, est d'environ 6°. L'angle de contact initial peut donc prendre n'importe quelle valeur comprise entre 102° et 108°. Etant donné que l'angle initial intervient dans la loi de Berge, on a donc pour chaque expérience, une courbe théorique associée.

Sur dix expériences, l'écart maximal d'angle de contact entre les différentes courbes expérimentales est de 2,5° et est obtenu lorsque la tension appliquée est nulle. Cet écart se réduit légèrement avec l'application de la tension et sa valeur n'est plus que de 1,5° à 91,7 V_{eff}. Par ailleurs, l'écart maximal entre les courbes expérimentales et les courbes théoriques correspondantes est dans tous les cas inférieur à 1°.

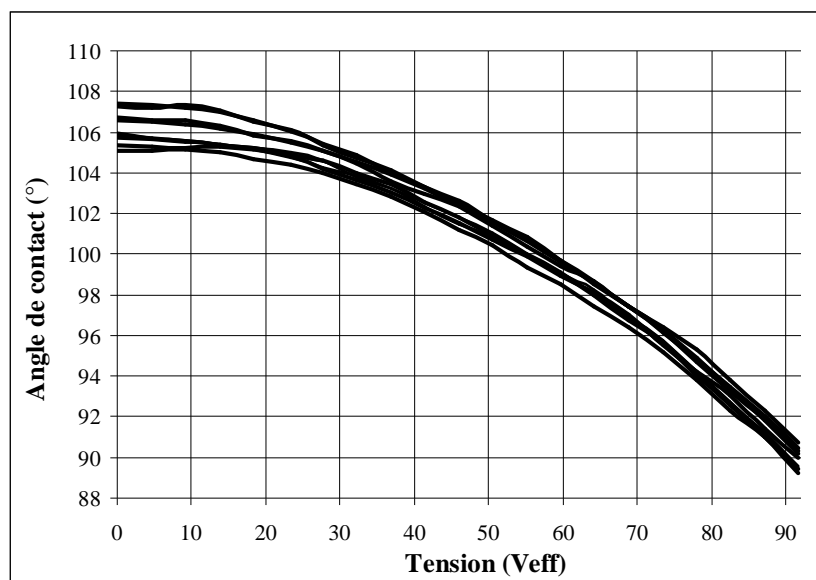


Fig. 52 Répétabilité des expériences d'électromouillage.

L'hystérésis de l'angle de contact peut être mise en évidence sur une expérience d'électromouillage avec une goutte soumise à un cycle de montée en tension puis de descente. Sur la courbe (Fig. 53), on observe que l'angle d'avancée est supérieur ou égal à l'angle de recul. L'écart maximal observé sur cette expérience est de 2° et est obtenu lorsque la tension est nulle. Plus la tension électrique est élevée, plus l'écart se réduit.

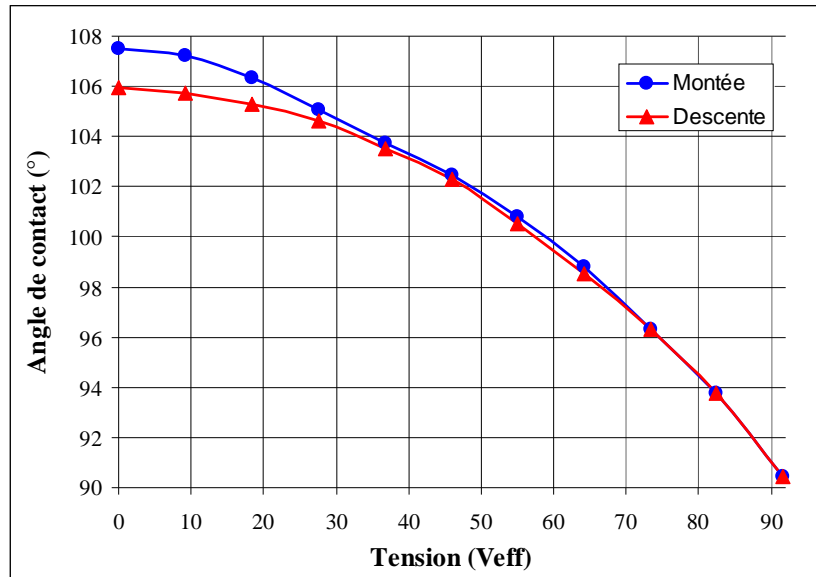


Fig. 53 Hystérésis de l'angle contact sur un cycle de montée et descente du potentiel électrique.

Ces expériences montrent que l'hystérésis de l'angle de contact est un phénomène difficilement maîtrisable et qui intervient forcément lorsque des problèmes de mouillage sont impliqués. On note que malgré le protocole que nous avons utilisé, pour lequel la tension est remise à zéro entre deux mesures afin que la goutte adopte le même angle (angle de recul) avant chaque incrémentation de la tension, le phénomène n'est pas évité, et on doit donc composer avec cette incertitude sur l'angle de contact. Néanmoins, il n'introduit pas d'écart majeur par rapport à la théorie de l'électromouillage.

d. Electromouillage d'une goutte de PBS dans l'huile

Des écoulements hydrodynamiques sont également observés sous huile et il convient donc d'envisager la possibilité d'étudier le système composé d'une goutte entièrement immergée dans un liquide immiscible tel que l'huile silicone. En changeant de milieu ambiant, on modifie les tensions de surface mises en jeu et donc par la même occasion les propriétés de mouillage et d'électromouillage de la goutte. On rappelle que la tension de surface d'une goutte de PBS dans l'huile silicone a été mesurée à 28 mN/m par la méthode de la goutte pendante.



Fig. 54 Etalement d'une goutte de PBS sous l'effet de la tension électrique. Expérience réalisée dans l'huile silicone.

L'évolution de l'angle de contact de la goutte de PBS immergée dans l'huile silicone est donnée ci-dessous (Fig. 55).

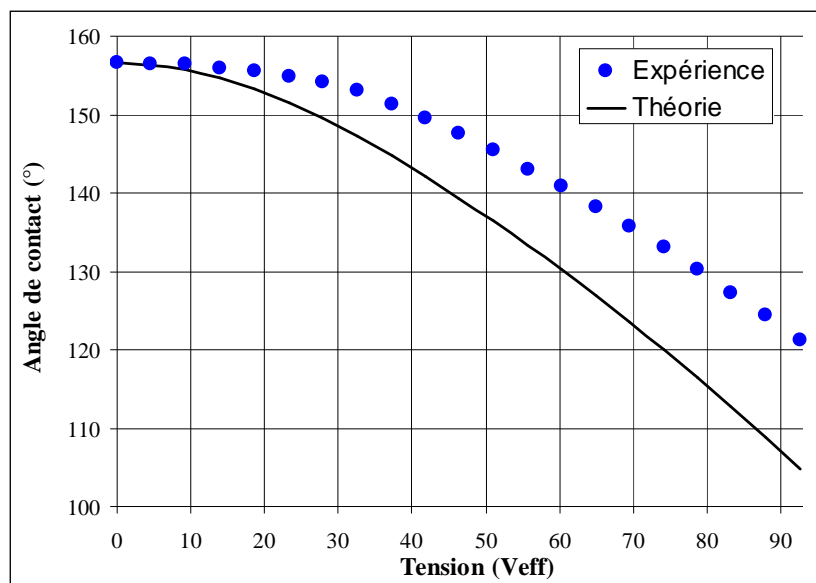


Fig. 55 Courbes d'électromouillage d'une goutte de PBS dans l'huile silicone.

Comparée à l'électromouillage dans l'air, la variation d'angle de contact induite lorsque la goutte est immergée dans l'huile est plus grande. Ceci s'explique par un nombre d'électromouillage plus grand, signifiant que l'électromouillage domine davantage la capillarité dans l'huile que dans l'air. Ainsi, la modification d'angle de contact induite dans l'huile est supérieure à 30° contre seulement 15° dans l'air. On note aussi que la comparaison des mesures expérimentales avec la courbe théorique correspondante fait apparaître un écart de valeur allant jusqu'à 15° . L'angle de contact à $91,7 V_{eff}$ aurait dû être observé selon la théorie pour une valeur de tension de seulement $70 V_{eff}$. De toute évidence, l'incertitude sur la mesure de la tension de surface ($28 \pm 3 \text{ mN/m}$) ne peut pas expliquer un tel écart. Pour trouver une explication il faut tenir compte de la présence de la phase ambiante liquide dont le mouillage entre en compétition avec celui de la goutte. La surface de la puce étant hydrophobe, on peut s'attendre à ce que l'huile mouille davantage le support que la goutte. Un film d'huile peut donc se former sous la goutte.

L'étude de films d'huile en électromouillage a d'abord été considérée par Quillet et *al.* (2002). Bien que l'existence de ce film soit d'une grande importance en électromouillage³, très peu d'études théoriques ou expérimentales lui ont été consacrées et sa caractérisation est

³ On attribue au film d'huile la réduction de l'hystérésis de mouillage d'une goutte ainsi que la limitation de l'adsorption de constituants biochimiques à la surface des puces.

particulièrement difficile à réaliser. Suivant la nature des 3 matériaux mis en jeu, des épaisseurs théoriques de quelques dizaines de nanomètres à plusieurs centaines de nanomètres sont possibles. Le lecteur pourra trouver une étude théorique détaillée concernant cette problématique dans les travaux de Marguerite Bienia (2005). Des mesures par interférométrie ont de plus été réalisées afin d'estimer expérimentalement le profil du film sous la goutte [Staicu and Mugele 2006]. L'observation d'anneaux de Newton sous la goutte témoigne de variations d'épaisseur de plusieurs centaines de nanomètres.

L'étude approfondie du film d'huile sous la goutte ne figure pas dans les objectifs de cette thèse ; néanmoins une estimation grossière peut être faite à partir de l'écart de mouillage qu'il induit. L'écart d'angle de contact observé est dû à une modification significative de la capacité électrique équivalente du système. Ainsi, contrairement au film d'huile déposé puis drainé pour lubrifier la puce dans les expériences d'électromouillage sous air, le film naturellement formé sous la goutte dans ce cas précis semble être beaucoup plus épais et son effet sur le mouillage ne peut pas être négligé.

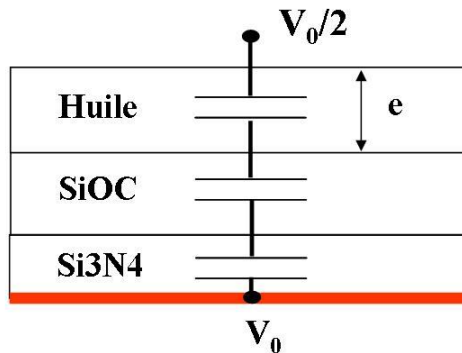


Fig. 56 Montage électrique équivalent prenant en compte la présence d'un film d'huile.

En faisant l'hypothèse d'un film d'huile uniformément réparti⁴ sous la goutte, l'épaisseur peut être estimée à partir du calcul de la capacité électrique équivalente du montage électrique représenté ci-dessus (Fig. 56). Dans ce modèle, la goutte est considérée comme un conducteur électrique parfait. Elle est donc isopotentielle à la valeur $V_0/2$. Les couches de Si_3N_4 et de SiOC sont considérées comme des diélectriques parfaits. La capacité électrique du système se déduit des valeurs expérimentales d'angle de contact :

$$C_{tot} = \frac{8\gamma(\cos(\theta_0) - \cos(\theta_m))}{V_{eff}^2}, \quad (82)$$

et :

$$e = \frac{\epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 - \epsilon_3 C_{tot} (d_1 \epsilon_2 + d_2 \epsilon_1)}{C_{tot} \epsilon_1 \epsilon_2}, \quad (83)$$

Les épaisseurs ainsi calculées sont représentées en fonction de la tension électrique appliquée sur la figure 57.

⁴ Hypothèse forte compte tenu des observations expérimentales menées par Staicu *et al.* (2006).

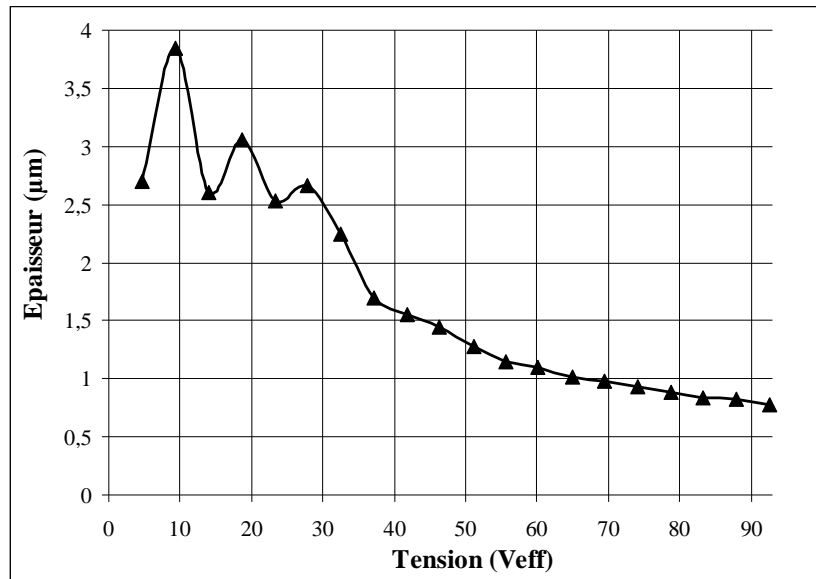


Fig. 57 Estimation de l'épaisseur du film d'huile à partir du modèle capacitif.

En dépit des limites du modèle qui ne tient pas compte du profil variable du film d'huile sous la goutte ni de sa stabilité⁵, les courbes montrent des résultats qualitatifs intéressants.

Ainsi, on observe que l'épaisseur du film est très importante à faible tension (entre 2,5 et 4 μm) et qu'elle décroît dans un premier temps très vite lorsque la tension électrique augmente témoignant d'un drainage sous l'effet de la pression électrostatique. L'amincissement du film ralentit ensuite pour se stabiliser vers une épaisseur de 750 nm.

Ces épaisseurs ont des valeurs supérieures à celles attendues notamment à basse tension. Néanmoins l'huile utilisée dans cette expérience a une tension de surface avec l'eau inférieure à celle utilisée par Staicu *et al.* (28 mN/m contre 34mN/m) ; de plus sa viscosité est beaucoup plus faible (5 mPa.s contre 100 mPa.s). Ainsi les propriétés de mouillage des deux huiles sont très différentes, ce qui pourrait expliquer que des épaisseurs supérieures au micromètre soient apparemment mesurées dans notre système alors qu'elles restent inférieures au micromètre dans les expériences de Staicu *et al.* (2006) Une étude plus approfondie serait nécessaire afin de déterminer si nos valeurs d'épaisseur sont pertinentes ou si le modèle doit être modifié.

e. Electromouillage avec surfactants sous huile

L'utilisation de surfactants (ou molécules tensioactives) est très répandue en électromouillage dès lors que l'on désire développer des protocoles biologiques dans les puces. Les surfactants permettent par exemple de limiter l'adsorption des cellules sur la surface des puces [Luk, Mo et al. 2008]. L'objectif est donc de voir si l'usage de ces molécules est envisageable pour la suite de notre étude.

Les surfactants sont composés d'une partie hydrophobe et d'une partie hydrophile. Ces molécules vont se loger préférentiellement aux surfaces liquides, en disposant leur partie hydrophile dans la goutte et leur partie hydrophobe dans le milieu environnant. L'adsorption des surfactants à la surface de la goutte provoque une diminution de la tension de surface. Etant donné que les tensioactifs agissent aux interfaces, ils sont efficaces même à des concentrations extrêmement faibles. Au delà d'une certaine concentration, appelée concentration micellaire critique (cmc), les molécules se regroupent dans le volume pour

⁵ A haute tension, le film peut se décomposer en plusieurs petites gouttelettes sous la goutte.

former des *micelles*, agglomérats dans lesquelles les parties hydrophobes sont protégées de l'eau.

Le surfactant que nous avons testé est le Tween 20 (Sigma Aldrich) que nous avons ajouté à la solution tampon de PBS à différentes concentrations. L'électromouillage des solutions obtenues est représenté sur la figure 58. L'intervalle de temps entre chaque mesure est de 3 secondes.

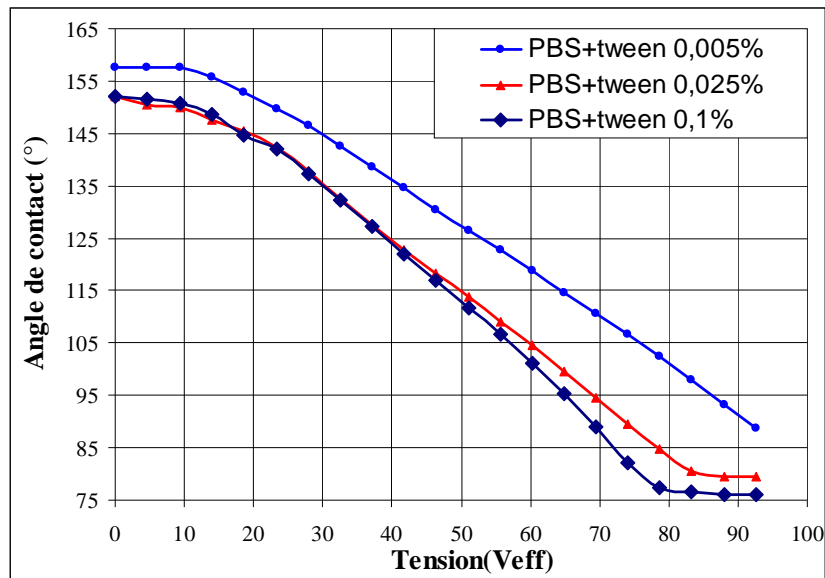


Fig. 58 Electromouillage d'une goutte de PBS contenant du Tween à différentes concentrations.

On constate que plus la concentration en surfactant est grande est plus l'étalement de la goutte est important. Pour les concentrations de 0,1 % et 0,025%, on observe un début de saturation de l'angle de contact à partir de 78,5 V_{eff} , phénomène que nous voulons éviter. Nous retenons alors la solution dont la concentration en Tween est de 0,005%. L'angle de contact de la goutte est supérieur à celui que l'on observe pour les autres concentrations. Ceci s'explique par une tension de surface plus élevée en raison d'une quantité plus faible en surfactant.

En réalité les valeurs d'angles données dans la figure 58 dépendent de l'intervalle de temps entre deux mesures consécutives. En effet, pour être actifs, les surfactants doivent atteindre la surface de la goutte. La migration des molécules tensioactives vers la surface de la goutte et leur adsorption à celle-ci n'est pas un phénomène instantané. Au contraire, il s'agit d'un phénomène lent, piloté par la diffusion de l'espèce chimique du volume vers l'interface liquide. Par conséquent, la tension de surface de la goutte varie au fur et à mesure que les molécules gagnent l'interface liquide ce qui se répercute sur l'angle de contact. Ce phénomène est observable sur la figure 59. La goutte est déposée sur la puce et est activée avec une tension de 91,7 V_{eff} . Une mesure d'angle est alors faite toutes les 5 s. L'expérience est répétée avec une goutte de PBS témoin ne contenant pas de surfactants.

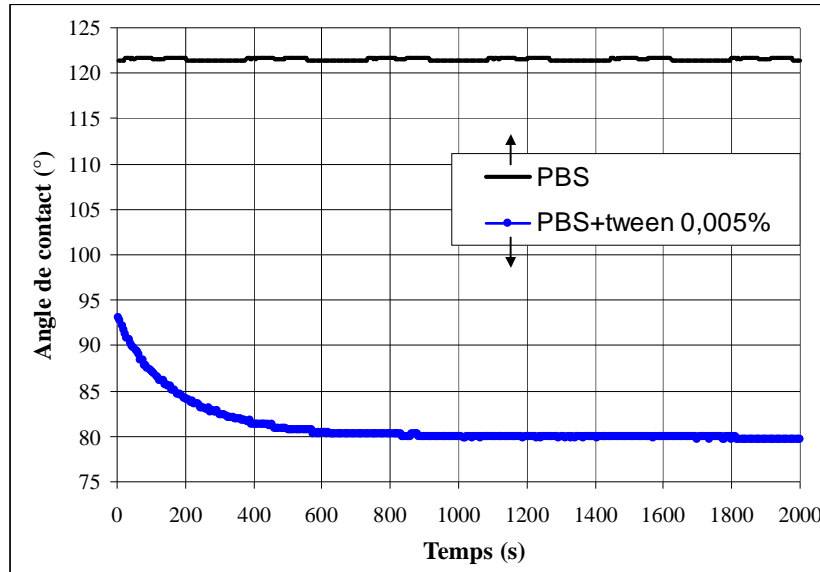


Fig. 59 Evolution de l'angle de contact d'une goutte de PBS contenant 0,005% de Tween 20 et d'une goutte de PBS sans surfactant. Les deux gouttes sont activées par électromouillage à une tension de $91,7V_{eff}$.

On observe que l'angle de mouillage de la goutte contenant du surfactant évolue au cours du temps jusqu'à atteindre une valeur asymptotique. Au contraire, pour la goutte de PBS ne contenant pas de surfactant, on vérifie que l'angle de contact est bien constant au cours du temps. La modification de l'angle de contact est bien liée à la présence de surfactants. L'angle de contact de la goutte contenant du Tween décrit une loi en exponentiel de la forme :

$$\theta_m(t) = (\theta_{mt0} - \theta_{mt\infty}) e^{-\frac{t}{\tau_\gamma}} + \theta_{mt\infty}, \quad (84)$$

où θ_{mt0} et $\theta_{mt\infty}$ sont les valeurs d'angle en début et fin d'expérience et τ_γ une constante de temps. Sa valeur est ajustée de manière à recoller aux mesures expérimentales (Fig. 60). On trouve ainsi que : $\tau_\gamma \approx 200s$.

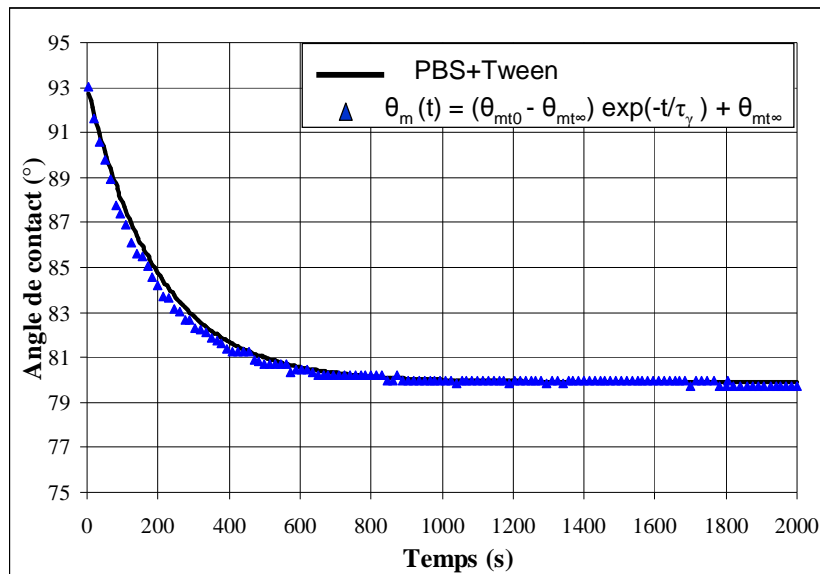


Fig. 60 Cinétique d'adsorption des surfactants à la surface d'une goutte activées par électromouillage.

Une loi similaire à l'équation (84) mais portant sur la tension de surface est donnée par Raccurt et *al.* (2007).

f. Configuration d'étude retenue

L'utilisation d'huile en tant que phase ambiante nous a permis dans un premier temps de nous affranchir du problème de l'évaporation de la goutte ce qui s'est avéré pratique pour la phase de réglage et d'optimisation du banc. Elle a également permis d'entreprendre des travaux sur la stabilité de la couche hydrophobe pour l'électromouillage [Malk, Davoust et al. 2010].

Néanmoins, en raison du peu d'informations dont nous disposons sur le film d'huile, on peut considérer que sa présence introduit une difficulté théorique supplémentaire quand à la modélisation et la compréhension du phénomène de recirculation. De même, l'expérience a montré que des problèmes de cinétique d'adsorption doivent être pris en compte dès lors que l'on désire étudier des gouttes contenant des surfactants, ajoutant ainsi une difficulté supplémentaire à l'étude. A cela s'ajoutent des difficultés d'ordre expérimentales telles que la réflexion d'une partie du faisceau laser par les parois de la cuve et l'amortissement des oscillations de la goutte par l'huile.

Nous avons donc estimé qu'il était préférable de poursuivre l'étude sous air pour ce qui relève de la compréhension et de la modélisation. En effet, dans ce cas, l'expérience d'électromouillage s'accorde parfaitement avec la théorie et le système est bien caractérisé (espace inter-électrodes et lubrification de la puce négligeable, électromouillage axisymétrique...); ce qui nous place dans des conditions favorables pour la suite de l'étude. En revanche la présence d'un milieu ambiant telle que l'huile silicone est quasi-systématique dès lors que des applications biologiques sont visées. Nous nous placerons donc sous huile dès qu'il s'agira de tester des applications concernant les recirculations.

La suite du chapitre concerne l'électromouillage d'une goutte de PBS sous air avec un espace inter-électrodes de 3 μ m.

g. Choix de l'épaisseur de la couche hydrophobe

Afin de profiter au maximum des procédés de fabrication existant, l'épaisseur de la couche diélectrique reste fixée à 600 nm. Cette épaisseur permet d'éviter le claquage de la couche diélectrique et par conséquent l'électrolyse de la goutte de PBS sur une large gamme de tension [Thery, Borella et al. 2007].

En revanche, la possibilité est offerte de choisir l'épaisseur de la couche hydrophobe de SiOC à la surface des puces sur une gamme allant de quelques nm à plusieurs μ m. Le choix de l'épaisseur de la couche hydrophobe est justifié à partir des expériences réalisées avec différentes épaisseurs et dont les résultats sont représentés sur la figure ci dessous (Fig. 61).

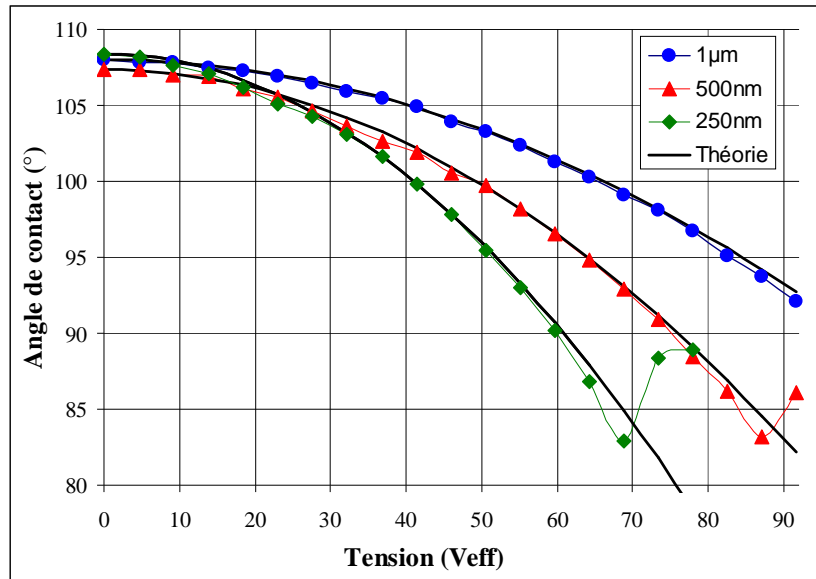


Fig. 61 Influence de l'épaisseur de la couche hydrophobe SiOC sur l'électromouillage.

On observe tout d'abord une bonne correspondance entre les courbes théoriques et les courbes expérimentales correspondantes pour les trois épaisseurs testées, démontrant la fiabilité et la maîtrise du processus de dépôt de SiOC.

On observe aussi l'apparition de la saturation pour des épaisseurs inférieures à 1 μm. Le phénomène se produit pour une tension de 68,8 V_{eff} et 87,1 V_{eff} pour des épaisseurs de 250 nm et 500 nm respectivement et pour des angles de contact avoisinant 83° dans les deux cas.

La saturation est un phénomène compliqué et sa compréhension ne fait pas partie des objectifs fixés dans le cadre de cette thèse; néanmoins, on note qu'elle apparaît dans notre cas pour des champs électriques dans la couche hydrophobe relativement faibles; en effet, le champ électrique dans la couche hydrophobe, sous la goutte (sans tenir compte de l'effet de coin), peut être estimé en considérant le modèle électrique équivalent suivant :

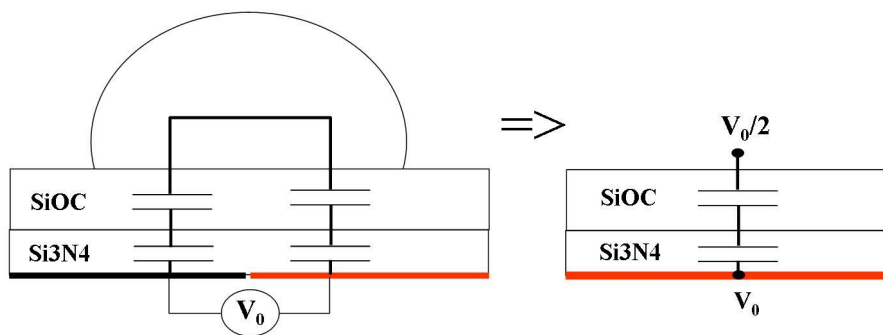


Fig. 62 Montage électrique équivalent.

Un pont diviseur de tension permet d'écrire que :

$$V_{SiOC} = \frac{Z_{SiOC} \times V_0}{2(Z_{SiOC} + Z_{Si_3N_4})}, \quad (85)$$

$$Z = \frac{1}{jC\omega} = \frac{e}{j\epsilon\omega}, \quad (86)$$

$$E_{SiOC} = \frac{V_0}{2(e_{SiOC} + \frac{\epsilon_{SiOC}}{\epsilon_{Si_3N_4}} e_{Si_3N_4})}, \quad (87)$$

où Z et e désignent l'impédance complexe et l'épaisseur de la couche diélectrique considérée, V_0 la différence de potentiel appliquée aux deux électrodes coplanaires, ϵ_i les permittivités diélectriques des matériaux i et ω la pulsation électrique. Les valeurs de champ électrique dans la couche hydrophobe au cours de l'expérience d'électromouillage sont représentées pour les trois épaisseurs sur la figure 63 :

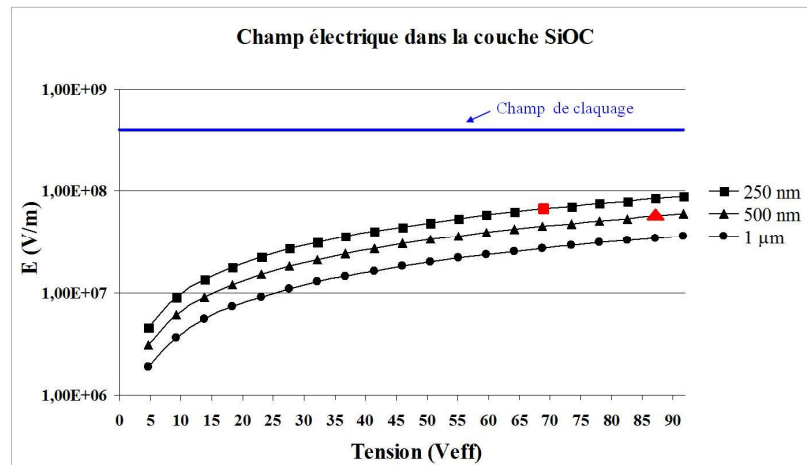


Fig. 63 Champ électrique dans la couche hydrophobe en fonction de son épaisseur. Les marques rouges indiquent la valeur à partir de laquelle la saturation est observée.

A la saturation, le champ électrique dans la couche hydrophobe avoisine seulement les 6 à $7 \cdot 10^7$ V/m, valeurs très inférieures au champ de claquage. Ceci alimente la thèse suivant laquelle la saturation serait liée à l'effet de coin au voisinage de la ligne triple et à l'augmentation brusque du champ électrique qui lui est associée [Drygiannakis, Papathanasiou et al. 2009]. Cet effet de concentration n'est pas pris en compte par le modèle électrique équivalent (Fig. 62) mais est illustré par la suite en utilisant la simulation numérique (approche locale). Ces expériences permettent de justifier le choix de l'épaisseur de SiOC : avec une couche de 1 μm , la saturation est évitée et n'interfère pas avec les mécanismes responsables des écoulements, objets de notre étude.

Partie B : Calculs électrostatiques par simulation numérique sous air

A lors que le déplacement et la dispense de gouttes ont été assez largement étudiés de manière numérique en configuration fermée [Wu, Yue et al. 2006; Jang, Lin et al. 2007], peu d'études numériques portent sur l'électromouillage en configuration ouverte. En effet, l'hypothèse classiquement faite consiste à considérer la goutte comme un conducteur électrique parfait. Ainsi, celle-ci est isopotentielle, avec un potentiel électrique fixé (configuration à électrode plongeante) ou flottant (configuration à électrodes coplanaires) suivant les configurations. Avec cette hypothèse, le champ électrique dans toute la goutte est nul, et l'on peut facilement estimer le champ électrique dans les couches diélectriques (Fig. 62). Cependant, pour des calculs plus précis et des estimations locales du champ électrique comme celles près de la ligne de contact ou à la surface de la goutte, le recours à la simulation numérique est indispensable. Cette partie présente un modèle visant à caractériser la répartition locale du champ électrique dans le système d'électromouillage. Outre la caractérisation du comportement électrique de la puce qui intéresse notre laboratoire, ce modèle est repris dans la partie suivante pour alimenter l'étude des contraintes électriques tangentielles. La question que l'on se posait en effet, lors des premières observations sur les écoulements, était de savoir si des contraintes électriques tangentielles pouvaient induire les écoulements que l'on observe. Ce modèle et les calculs numériques associés font donc d'abord l'objet d'une validation puis les limites du modèle sont précisées.

1. Modèle électrostatique en électromouillage

Nous réalisons un calcul 2D repéré par le système de coordonnées cartésiennes (x,y) . Un calcul électrostatique 2D est beaucoup plus simple à mettre en œuvre qu'un calcul 3D en raison de difficultés de modélisation que nous évoquerons plus loin. Dans ce chapitre nous reprenons le modèle développé par Hong et *al.* (2008) que nous adaptons à notre configuration d'étude et que nous complétons afin de pouvoir calculer la tension effective d'électromouillage suivant deux approches différentes. La notation complexe a été introduite dans le chapitre 1 (page 35) pour des calculs mettant en jeu des signaux électriques alternatifs. Les valeurs efficaces des grandeurs électriques, V_{eff} et E_{eff} , se déduisent des grandeurs complexes [Jackson 1999] grâce aux relations suivantes :

$$V_{eff} = \sqrt{\frac{1}{2} \text{Re}(V^* \cdot \text{Conj}(V^*))}, \quad (88)$$

$$E_{x,eff} = \sqrt{\frac{1}{2} \text{Re}(E_x^* \cdot \text{Conj}(E_x^*))}, \quad (89)$$

$$E_{y,eff} = \sqrt{\frac{1}{2} \text{Re}(E_y^* \cdot \text{Conj}(E_y^*))}, \quad (90)$$

$$E_{eff} = \sqrt{\frac{1}{2} \text{Re}(E^* \cdot \text{Conj}(E^*))} = \sqrt{E_{x,eff}^2 + E_{y,eff}^2}, \quad (91)$$

où les grandeurs étoilées représentent les grandeurs complexes dont les parties réelles et conjuguées sont désignées par *Re* et *Conj*.

Le tenseur de Maxwell moyenné dans le temps s'écrit :

$$\langle \overline{\mathbf{T}_e} \rangle = \frac{1}{2} \text{Re} \left[-\frac{1}{2} \varepsilon (\mathbf{E}^* \cdot \text{Conj}(\mathbf{E}^*)) \overline{\mathbf{I}} + \varepsilon \mathbf{E}^* \otimes \text{Conj}(\mathbf{E}^*) \right], \quad (92)$$

soit encore :

$$\begin{aligned} \langle \overline{\mathbf{T}_e} \rangle &= \frac{1}{2} \text{Re} \left(-\frac{1}{2} \varepsilon (E_x^* \cdot \text{Conj}(E_x^*) + E_y^* \cdot \text{Conj}(E_y^*)) \overline{\mathbf{I}} \right. \\ &\quad \left. + \varepsilon (E_x^* \mathbf{e}_x + E_y^* \mathbf{e}_y) \cdot (\text{Conj}(E_x^*) \mathbf{e}_x + \text{Conj}(E_y^*) \mathbf{e}_y) \right). \end{aligned} \quad (93)$$

A la surface de la goutte S_g orientée vers l'extérieur suivant la normale $\mathbf{n}(n_x, n_y)$, la projection du tenseur de Maxwell suivant \mathbf{e}_x permet de calculer la tension effective d'électromouillage moyenne $\langle T_{EM} \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle T_{EM} \rangle &= \int_{S_g} \langle \overline{\mathbf{T}_e} \cdot \mathbf{n} \rangle \cdot \mathbf{e}_x \\ &= \int_{S_g} \frac{1}{2} \text{Re} \left[\frac{1}{2} \varepsilon (E_x^* \cdot \text{Conj}(E_x^*) - E_y^* \cdot \text{Conj}(E_y^*)) n_x + \varepsilon \text{Conj}(E_x^*) \cdot E_y^* n_y \right]. \end{aligned} \quad (94)$$

Par ailleurs, en adoptant l'approche énergétique, cette tension s'exprime également au travers du calcul de la charge électrique moyenne accumulée à la surface S_d entre la goutte, désignée par l'exposant g, et le diélectrique désigné par l'exposant d :

$$q_s^* = (\varepsilon^d E_y^{*d} - \varepsilon^g E_y^{*g}), \quad (95)$$

$$\langle q_s \rangle = \frac{1}{2} \text{Re}(q_s^* \cdot \text{Conj}(q_s^*)), \quad (96)$$

et :

$$\langle T_{EM} \rangle = \frac{C}{2} V_{eff}^2 = \frac{1}{2S} \int_{Sd} \langle q_s \rangle V_{eff}, \quad (97)$$

C étant la capacité électrique équivalente des deux couches diélectriques.

2. Mise en place du calcul numérique

a. Présentation de Comsol Multiphysics

Comsol Multiphysics est un logiciel de simulation numérique permettant de modéliser une très large gamme de phénomènes physiques tel que l'électrostatique, la mécanique des fluides ou encore la thermique, et ceci à l'aide de modules spécifiques dédiés. Le logiciel repose sur la résolution d'équations différentielles partielles (EDP) discrétisées par la méthode des éléments finis. Le domaine de calcul est alors subdivisé en éléments triangulaires ou rectangulaires dont les sommets correspondent aux nœuds du maillage. La solution est calculée à chaque nœud puis interpolée sur tout le domaine. Ce logiciel doit entre autre sa popularité à la possibilité de coupler différents mécanismes physiques dans un même calcul. Par ailleurs la connectivité avec *Matlab* permet d'accroître davantage les possibilités du logiciel notamment par la réalisation de *scripts* permettant par exemple le paramétrage de la géométrie de calcul ou encore le calcul en boucle. Nous utilisons ici le module *Milieu Conducteur DC* pour réaliser des calculs d'électrostatiques pour l'électromouillage.

b. Implémentation du modèle

La configuration pour laquelle nous mettons en place ce modèle (électrodes coplanaires), ne comporte pas d'axisymétrie. Le champ électrique est alors calculé sur une coupe 2D orthogonale à l'espace inter-électrodes et sera soumis à validation.

Les mesures expérimentales faites dans la partie précédente (Fig. 50) ont montré que la lubrification de la surface de la puce ne modifiait pas significativement l'angle de contact de la goutte. On peut donc négliger sa présence dans ce modèle. Le domaine de calcul correspond à la configuration retenue et comporte 4 régions qui sont : la goutte, le milieu ambiant et les deux couches diélectriques dont les épaisseurs correspondent aux épaisseurs expérimentales (1 μm et 0,6 μm pour les couches de SiOC et de Si₃N₄ respectivement). Le domaine de calcul est centré sur l'espace inter-électrodes dont la valeur est de 3 μm (Fig. 64). Le profil de la goutte peut se réaliser de différentes manières :

i) On dessine sur le logiciel aux éléments finis, *Comsol multiphysics*, une calotte sphérique dont les caractéristiques macroscopiques correspondent à celles observées expérimentalement (même angle de contact, même rayon de mouillage et même hauteur...). Cette méthode peut s'avérer fastidieuse si l'on veut effectuer des calculs avec différentes

valeurs de tension électrique. En effet, la géométrie de la goutte doit alors être modifiée, ce qui implique que le domaine soit remaillé.

ii) On calcule le profil de la goutte. Dans ce cas, sa courbure est donnée par l'équilibre entre les forces de capillarité et les forces électriques. Cette méthode a l'avantage de tenir compte du profil microscopique de la goutte au voisinage du point triple (page 52) et est utilisée dans le modèle développé par Drygiannakis et *al.* (2009) portant sur la saturation de l'angle de contact. L'inconvénient de cette méthode est qu'elle est plus difficile à mettre en œuvre.

iii) On importe la géométrie de la goutte à partir des images issues des expériences d'électromouillage. C'est la méthode que nous avons retenue et qui est également utilisée par Hong *et al.* (2008). Le domaine a alors les mêmes dimensions macroscopiques que la goutte expérimentale. Cependant, le profil microscopique des gouttes n'étant pas observable avec notre caméra, il n'est donc pas pris en compte par cette méthode. Un code développé sous Matlab nous permet d'extraire les profils de goutte, de les intégrer dans Comsol et de résoudre le modèle de manière automatique sans avoir à remailler le domaine en cas de changement de géométrie.

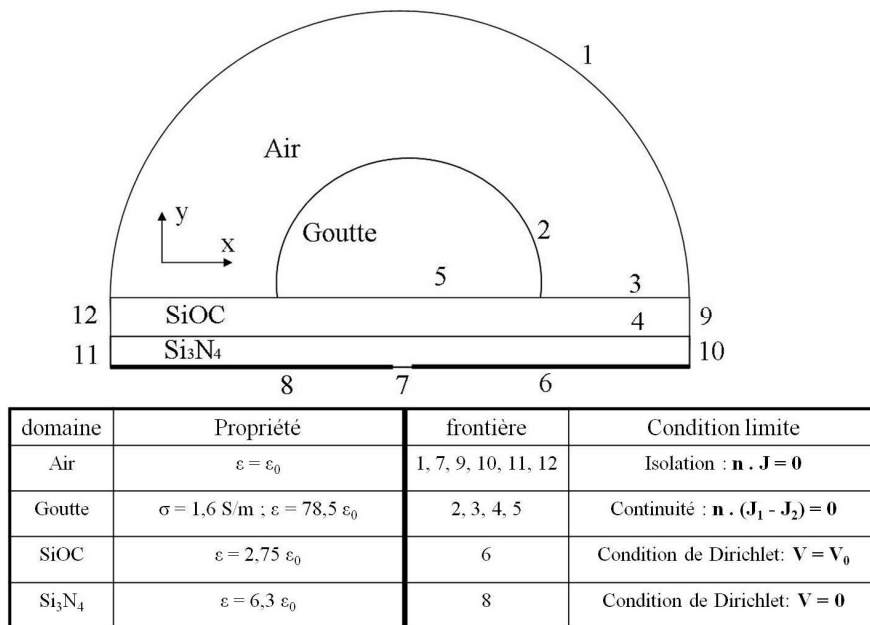


Fig. 64 Domaine de Calcul, propriétés électriques et conditions aux limites.

Les valeurs de conductivité électrique complexe (équation (29)) correspondant à chaque domaine de calcul sont saisies et l'équation du potentiel électrique complexe (équation (33)) est résolue. Le milieu ambiant ainsi que les couches d'isolation sont considérés comme étant des diélectriques parfaits. Sur l'électrode de gauche, le potentiel électrique est fixé à la masse tandis que sur l'électrode de droite, un potentiel sinusoïdal est imposé. Sur toutes les interfaces, l'équation de continuité du courant complexe (équation (37)) est appliquée tandis que sur les limites du domaine, une condition d'isolation est imposée.

Le maillage des domaines se fait avec des éléments triangulaires et comporte en moyenne 50000 points de calcul. L'essentiel des nœuds se concentrent aux points triples, lieux de singularités de calcul et d'effets de pointes.

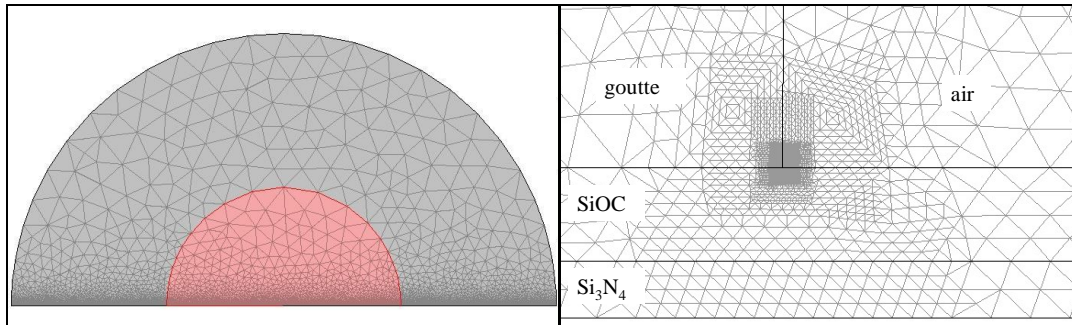


Fig. 65 Maillage du domaine de calcul (à gauche) et du point triple (à droite).

3. Résultats numériques et validation du modèle

a. Distribution du potentiel dans le système

Une représentation du champ électrostatique sur une coupe 2D est donnée sur la figure 66 pour une goutte de PBS placée dans l'air et activée par un signal électrique de $91,7 V_{\text{eff}}$ et de 3 kHz. Les plages de couleur désignent les valeurs du potentiel électrique tandis que les contours représentent les courbes isopotentielles. On observe alors que le potentiel électrique est uniforme dans la goutte et que sa valeur est exactement égale à la moitié de la tension électrique appliquée aux électrodes. Ceci confirme l'hypothèse faite précédemment de goutte parfaitement conductrice. Jusqu'ici, cette hypothèse ne reposait que sur des considérations globales mais ne permettait pas de conclure quant à la répartition locale du potentiel dans la goutte. Le calcul numérique permet de voir que le potentiel électrique de la goutte est uniforme y compris près des coins. L'éventuel phénomène électrohydrodynamique à l'origine des écoulements ne peut donc pas être d'origine volumique ; on peut exclure l'implication de l'électro-osmose ou de forces coulombiques agissant sur les traceurs de l'écoulement (pistes initialement considérées lors des premières observations mais rapidement abandonnées ensuite).

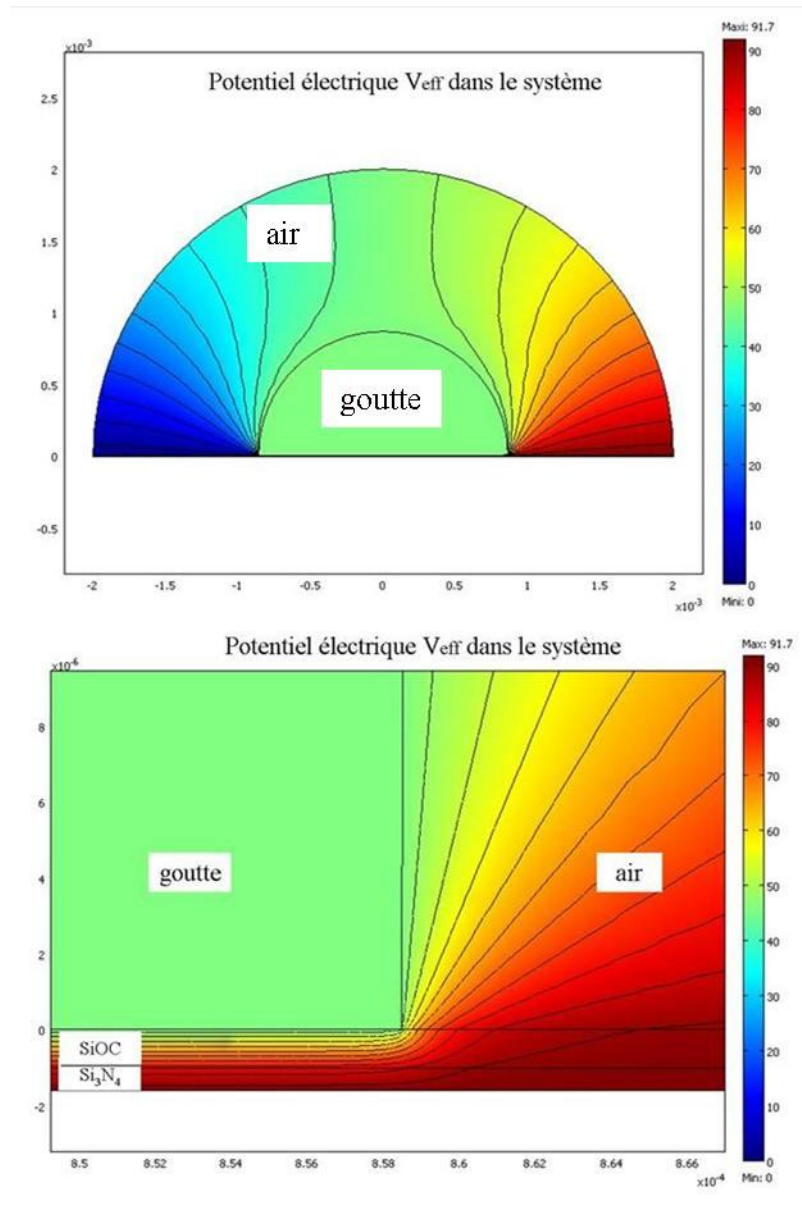


Fig. 66 Potentiel électrique (couleur) et courbes isopotentielles dans le système.

La variation de potentiel électrique est localisée en dehors de la goutte et particulièrement dans les couches diélectriques où les courbes isopotentielles sont les plus resserrées. En vertu de l'équation (28), le champ électrique descend les potentiels et est orienté orthogonalement aux isopotentielles. Des lignes de potentiel resserrées signifient donc que le champ électrique atteint des valeurs élevées, au contraire, lorsque les lignes s'écartent, le gradient de potentiel électrique diminue et le champ devient moins important. C'est donc dans les couches diélectriques que le champ électrique atteint les valeurs les plus élevées.

b. Champ électrique dans les couches diélectriques et calcul de la tension effective d'électromouillage

Lorsque l'on est suffisamment loin du point triple et de l'espace inter-électrodes, (régions particulières sur lesquels nous reviendrons par la suite), le profil transversal du champ électrique dans les couches diélectriques de Si₃N₄ et de SiOC est donné par la figure 67.

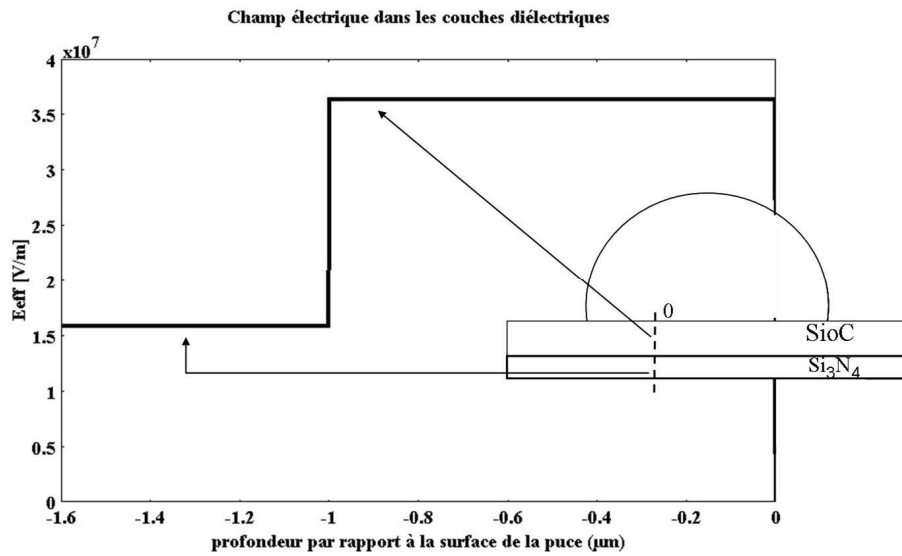


Fig. 67 Champ électrique à travers les couches diélectrique sur une section située sous la goutte.

Le champ électrique est constant dans chacune des couches mais atteint des valeurs différentes suivant les propriétés des matériaux. Ainsi, dans la couche de nitrure, dont l'épaisseur est de 600 nm et la permittivité relative de 6,3, sa valeur est d'environ $1,59 \cdot 10^7 \text{ V/m}$, tandis que dans la couche hydrophobe (1 μm d'épaisseur, permittivité relative de 2,75), elle est de $3,63 \cdot 10^7 \text{ V/m}$. On note d'ailleurs, que cette valeur est identique à celle fournie par le schéma électrique équivalent présenté dans la partie précédente (Fig. 63). De plus, le champ électrique se répartit entre les deux couches diélectriques suivant un rapport égal à :

$$\frac{E_{SiOC}}{E_{Si_3N_4}} = \frac{\epsilon_{Si_3N_4}}{\epsilon_{SiOC}}, \quad (98)$$

qui est indépendant de l'épaisseur des couches diélectriques.

Le calcul du champ électrique dans les couches diélectriques permet d'accéder à la charge électrique surfacique (équation (96)) accumulée à l'interface solide-liquide et donc au calcul de la tension effective d'électromouillage (équation (97)). Celle-ci est calculée numériquement et est comparée aux valeurs expérimentales issues de l'électromouillage d'une goutte de PBS dans l'air (Fig. 50). Le calcul numérique permet de retrouver les valeurs expérimentales de manière très satisfaisantes comme le montre la superposition des deux courbes (Fig. 68).

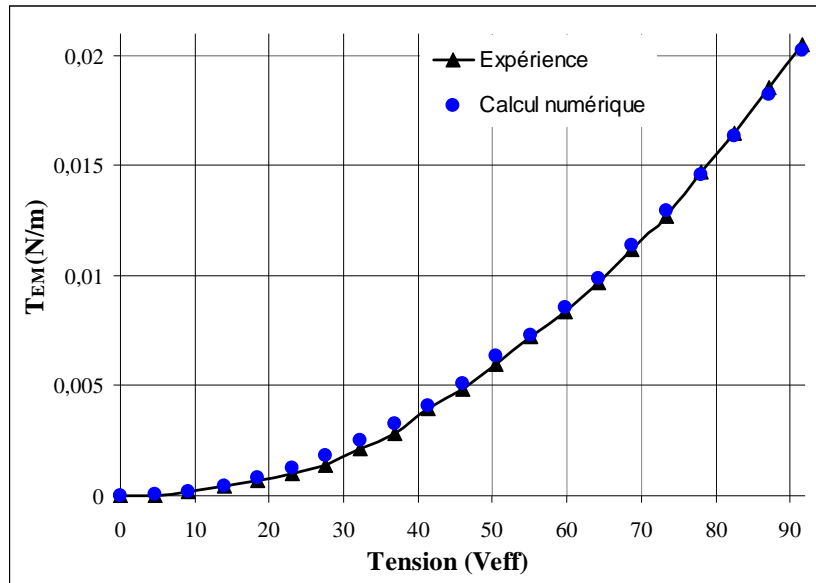


Fig. 68 Comparaison entre la tension effective d'électromouillage déduite de l'expérience et celle calculée par le modèle numérique.

Ces deux calculs ((Fig. 67) et (Fig. 68)) permettent de valider le modèle numérique mis en place ainsi que l'approche 2D utilisée.

c. Espace inter-électrodes

Nous avons vu (Fig. 50) que l'on pouvait considérer que l'électromouillage de la goutte n'était pas affecté par l'espace inter-électrodes de 3 μm. Cependant, on montre ici que l'effet de cet espace devient significatif lorsque sa valeur augmente. Ainsi, sur les courbes représentées sur la figure 69, on peut vérifier que la goutte s'étale de moins en moins à mesure que l'espace inter-électrodes augmente traduisant un mouillage de la goutte de moins en moins efficace.

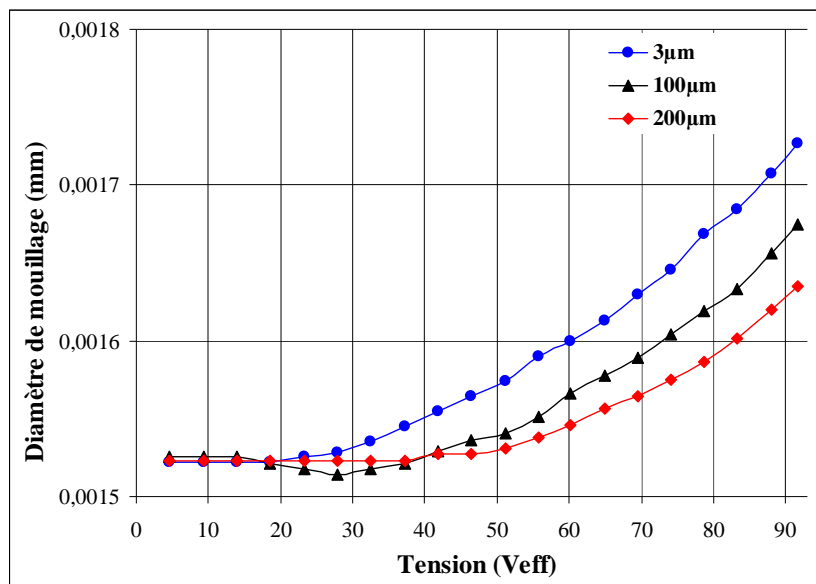


Fig. 69 Mesures expérimentales du diamètre de mouillage en fonction du potentiel électrique pour différentes valeurs de l'espace inter-électrodes.

L'explication d'un tel comportement est donnée par les courbes numériques (Fig. 70), réalisées à partir des profils de goutte expérimentaux correspondant à des espaces de 3 μm et 200 μm à 91,7 V_{eff} , et représentant la charge électrique surfacique accumulée à la surface de la puce. Cette charge électrique est un indicateur de l'énergie électrostatique pouvant être stockée par la puce et donc de la capacité à modifier le mouillage de la goutte. Le calcul numérique montre qu'au niveau de l'espace inter-électrodes la charge électrique devient nulle. Par conséquent, l'énergie électrostatique par unité de surface pouvant être stockée par la puce diminue à mesure que l'espace inter-électrodes augmente.

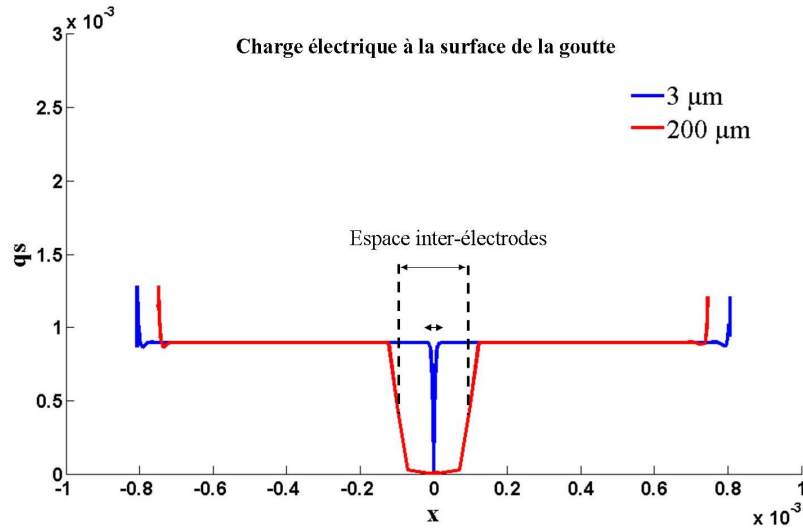


Fig. 70 Calcul numérique de la charge électrique à la surface de la goutte pour deux valeurs d'espace inter-électrodes.

L'électromouillage d'une goutte en configuration coplanaire suit donc en réalité la loi de Berge (équation (74)) corrigée par la prise en compte d'une surface d'électrodes effective A_{rel} , qui dépend à la fois de l'espace inter-électrodes et de la surface mouillée par la goutte recouvrant la puce :

$$\cos(\theta_m) = \cos(\theta_0) + A_{rel} \frac{CV^2}{8\gamma}, \quad (99)$$

$$A_{rel} = \frac{D_m - g}{D_m}, \quad (100)$$

où D_m et g désignent respectivement le diamètre de mouillage et l'espace inter-électrodes. Une expression similaire est donnée par Yi et al. (2006).

Pour un espace de 3 μm , la valeur du paramètre A_{rel} est supérieure à 0,99 et l'effet sur le mouillage est insignifiant mais pour des espaces plus grands (200 μm), elle descend à 0,87 et suffit à réduire l'étalement général de la goutte de 3° (Fig. 71).

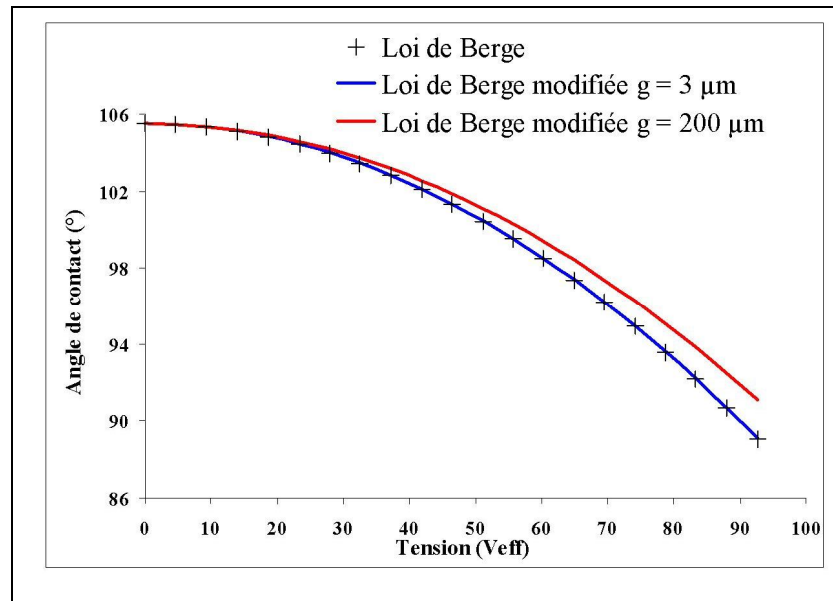


Fig. 71 Loi de Berge et lois de Berge modifiées par la prise en compte de l'espace inter-électrodes 'g'.

Enfin, comme nous le verrons par la suite, un espace inter-électrodes important (supérieur à 100 µm), en plus de modifier l'étalement de la goutte, induit une déformation locale de sa forme située au dessus de l'espacement et qui est plus particulièrement importante lorsque la goutte est entourée d'huile en raison de la tension de surface plus petite. Ces aspects seront abordés dans la partie A du chapitre 5.

4. Limites et difficultés de la modélisation

Le modèle numérique permet d'estimer correctement les valeurs de champs électriques loin du point triple et les valeurs de tension effective d'électromouillage par l'approche énergétique. Néanmoins, les grandeurs qui nous intéressent (contraintes électriques surfaciques) se concentrent au voisinage du point triple. Or à cet endroit, le modèle souffre de lacunes dont la portée est ici évaluée.

a. Singularité de calcul

En affichant le champ électrique normal à la surface de la goutte (Fig. 72), on se rend compte qu'il est quasiment nul sur toute la surface excepté lorsque l'on se rapproche du point triple où il atteint un pic de valeur très élevé et très localisé traduisant un effet de concentration.

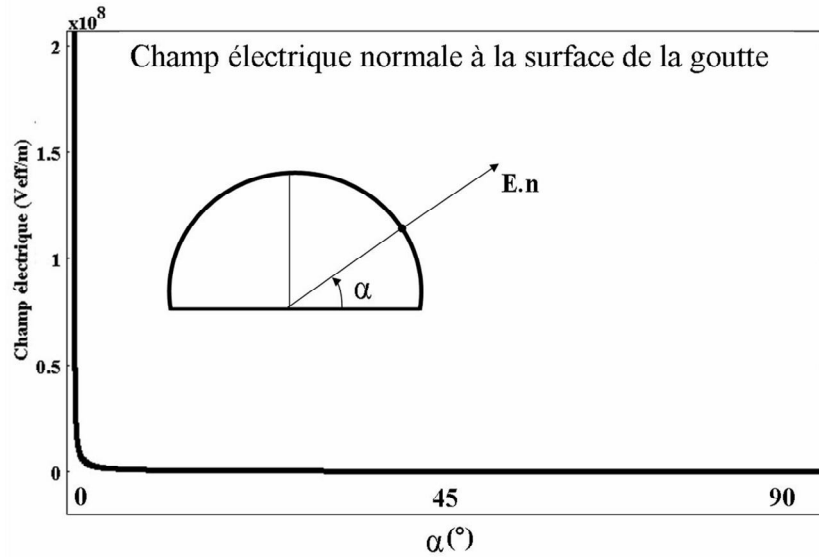


Fig. 72 Composante normale du champ électrique à la surface de la goutte.

On parle d'effet de coin pour traduire l'augmentation soudaine du champ électrique à l'approche du point triple. En réalité, le calcul de l'effet de coin fait apparaître une singularité localisée au point triple. Cette singularité concerne toutes les grandeurs reliées au champ électrique (charge surfacique, contrainte de Maxwell...) et se manifeste sur toutes les surfaces adjacentes au point triple (diélectrique, surface de la goutte...) (Fig. 73). En revanche, elle n'affecte pas le potentiel électrique qui affiche au point triple une valeur finie égale à la moitié de la tension électrique appliquée.

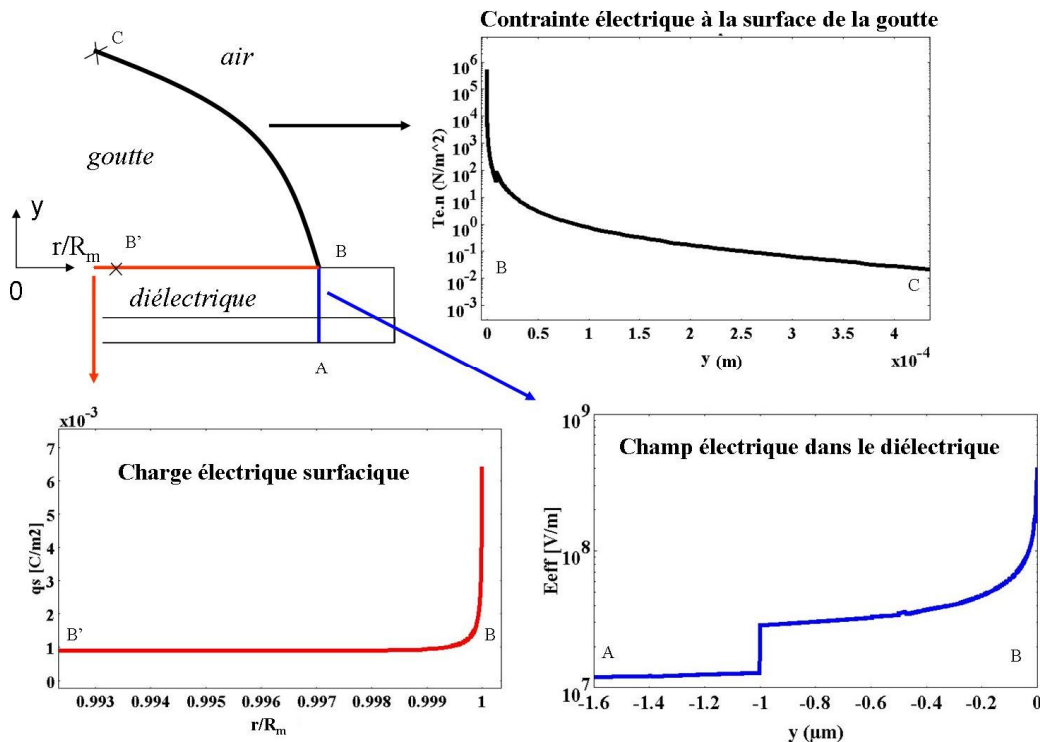


Fig. 73 Illustration de la singularité au point triple portant sur trois grandeurs différentes et représentées sur trois surfaces différentes ayant en commun le point triple, avec R_m le rayon de mouillage de la goutte.

Contrairement à ce que l'on peut penser, la singularité n'est pas liée à la présence de trois milieux aux propriétés électriques distinctes se rejoignant en un point. Elle est intrinsèque à la

présence d'un coin qui constitue une singularité géométrique. La solution de l'équation de Laplace, à laquelle satisfait le potentiel électrique (équation (23)), admet une solution dont la dérivée au point triple n'est pas définie, ce qui explique que le champ électrique soit affecté par la singularité et non le potentiel électrique [Timouyas 2003; Jamelot 2005]. En arrondissant le coin, on supprime la singularité du domaine de calcul et par la même occasion la singularité du champ électrique. Un modèle analytique permet de calculer le champ électrique singulier produit par un coin ainsi que le champ électrique (non singulier) produit par un coin arrondi sous certaines hypothèses [Vallet, Vallade et al. 1999]. Des considérations arbitraires sur le profil de l'arrondi sont néanmoins supposées, modifiant la valeur du champ électrique.

Dans les calculs de simulation numérique, la singularité ne remet pas en cause la validité de la solution numérique 'loin' du point triple. Au-delà d'une distance de quelques centaines de nanomètres de la singularité, la solution numérique est exacte et le champ électrique affiche des valeurs conformes aux valeurs expérimentales (Fig. 68). La divergence du champ électrique se traduit numériquement par un pic dont la valeur dépend entièrement de la taille des mailles adjacentes au point triple. Plus le maillage est resserré autour du point triple et plus le champ électrique atteint une valeur importante. Le risque du calcul est de surestimer (ou de sous-estimer) la valeur du champ électrique par des mailles de tailles trop petites (respectivement trop grandes).

b. Champ et contrainte électrique à la surface de la goutte

Une illustration des limites du modèle est donnée par le tableau 7. On peut voir que la variation de la taille des mailles se traduit par des valeurs de champ électrique au point triple qui sont très variables. Sa valeur est aberrante lorsque la taille des mailles est de 1 nm car elle dépasse largement le champ de claquage de la couche hydrophobe de SiOC, or nous n'observons pas de claquage lors de nos expériences. L'estimation exacte du champ électrique au point triple est alors rendue impossible par notre modèle.

Taille des mailles	E au point triple (V/m)
1 nm	$5,308.10^8$
10 nm	$3,263.10^8$
30 nm	$1,308.10^8$
100 nm	$8,22.10^7$

Tab. 7 Dépendance du champ électrique au point triple en fonction de la taille des mailles. Le potentiel électrique appliqué a une valeur de $91,7 V_{\text{eff}}$.

La dépendance au maillage se retrouve également sur le calcul de la tension effective d'électromouillage lorsque l'approche tensorielle est utilisée (équation (94)). Contrairement au calcul du champ électrique au point triple pour lequel nous n'avons aucune valeur à laquelle se référer, pour le calcul de la tension effective d'électromouillage on dispose de la valeur calculée par l'approche énergétique et qui a été vérifiée par l'expérience (Fig. 68).

Nombre de mailles	Taille des mailles adjacentes au point triple	$\langle T_{EM} \rangle$ (N/m) (approche énergétique)	$\langle T_{EM} \rangle$ (N/m) (approche tensorielle)	Ecart relatif
118342	1 nm	0.02018	0.0163	19%
113934	10 nm	0.02018	0.0141	30%
87496	30 nm	0.02018	0.0129	36%
84152	100 nm	0.02018	0.0112	44%

Tab. 8 Calcul numérique de la tension effective d'électromouillage par les deux approches en fonction du maillage, pour une tension de 91,7 V_{eff} .

Alors que la valeur calculée par l'approche énergétique est stable et indépendante du maillage, celle calculée par l'approche tensorielle présente deux caractéristiques : elle dépend énormément du maillage et est très éloignée de la valeur attendue (plus de 19% d'écart dans tous les cas). Ces deux caractéristiques sont les conséquences de deux limitations du modèle. En effet :

i) La dépendance du maillage est liée à la présence de la singularité du champ. Pour l'approche tensorielle, la fonction à intégrer est nulle sur toute la surface à l'exception du voisinage du point triple (Fig. 72) où est localisée la singularité. La dépendance au maillage est alors extrêmement élevée. Pour l'approche énergétique, la fonction à intégrer se répartit sur toute la surface de la goutte et l'influence de la singularité est minime.

ii) L'écart de valeur important ne peut pas être uniquement attribué à la singularité de calcul. En effet, aucun maillage testé ne permet de converger vers la valeur expérimentale. Il faudrait diminuer encore plus la taille des mailles mais la valeur du champ électrique est déjà irréaliste à 1 nm (Tab. 7). L'écart de valeur provient donc d'un autre facteur qui est le profil géométrique de la goutte. Notre modèle comme nous l'avons dit ne tient pas compte du changement de courbure micrométrique près du point triple. L'erreur de calcul peut sembler disproportionnée par rapport à l'approximation géométrique faite sur le contour de la goutte mais ici encore elle s'explique par la concentration du champ électrique à l'endroit même où l'approximation géométrique a lieu.

En résumé, l'évaluation de la contrainte électrique normale est rendue difficile en raison de la concentration du champ électrique à un endroit (le point triple) où une singularité de calcul se produit et où le contour de la goutte est mal défini. On doit donc s'attendre à ce que le modèle numérique fournisse des valeurs locales de contraintes électriques surfaciques entachées d'une erreur de 30 à 50 % (Tab. 8). Cependant, même en tenant compte d'une précision de calcul aussi faible, il permet comme nous allons le voir de donner des indications précieuses quand à l'implication des contraintes électriques tangentielles dans le phénomène d'écoulement.

c. Position par rapport à l'état de l'art

Le modèle numérique que nous avons utilisé reprend en grand partie les caractéristiques du modèle développé par Hong *et al.* (2008). Ainsi, la géométrie de la goutte ne tient pas compte du profil microscopique et le seul traitement apporté pour la singularité de calcul consiste à raffiner localement le maillage au niveau du point triple. Le modèle de Hong *et al.* (2008) repose sur une configuration à électrode plongeante (Fig. 15) et est utilisé pour étudier l'influence de la fréquence du signal électrique dans le phénomène de claquage du diélectrique. Une curiosité nous interpelle lorsque l'on reprend cette étude. En effet, l'auteur

calcule la tension effective d'électromouillage par l'approche tensorielle et les valeurs calculées sont comparées aux valeurs expérimentales. Une bonne correspondance est alors observée. En revanche, on peut s'étonner de voir que ces valeurs sont très différentes de celles calculées par l'approche énergétique. En effet, en reprenant les valeurs de l'article et en les adaptant avec nos notations on a, avec l'approche tensorielle, à 1 kHz et à 143 V_{eff} :

$$\frac{\langle T_{EM} \rangle_{Hong}}{\gamma} = 0,5 , \quad (101)$$

$$\langle T_{EM} \rangle_{Hong} = 0,5 \times 0,073 = 0,036 \text{ N/m} . \quad (102)$$

Or, dans le même temps le calcul de la tension effective d'électromouillage par l'approche énergétique, en reprenant les caractéristiques du diélectrique utilisé dans l'article donne :

$$\langle T_{EM} \rangle_{Hong} = \frac{C_{eq}}{2} V_{eff}^2 = \frac{2,7\epsilon_0}{2 \times 5.10^{-6}} \times 143^2 = 0,048 \text{ N/m} , \quad (103)$$

soit un écart relatif de 25%. Le même écart de valeur est constaté à 0 Hz, c'est à dire avec un signal électrique continu, ce qui signifie qu'il n'est pas imputable à un effet résistif de la goutte. Aucune explication n'est donnée dans l'article et ce point reste un mystère. On note simplement que les résultats du modèle de Hong *et al.* (2008) sont inversés par rapport aux nôtres : notre modèle permet d'estimer correctement la contrainte d'électromouillage avec l'approche énergétique et d'approcher sa valeur avec l'approche tensorielle ; dans l'étude de Hong *et al.*(2008), c'est le contraire.

Le modèle le plus complet en électromouillage est probablement celui de Drygiannakis *et al.* (2009) que nous avons déjà cité à plusieurs reprises. En effet, dans ce modèle dédié à l'étude de la saturation, le profil microscopique de la goutte est calculé numériquement. Ce type de calcul a déjà été réalisé Buehrle *et al.* (2003) mais le système d'électromouillage n'était pas complet (portion de goutte ...). La prise en compte du contour microscopique permet d'améliorer la précision du calcul, néanmoins les auteurs reconnaissent une faiblesse dans leur calcul du champ électrique au point triple. En effet, face à la dépendance de la valeur calculée au maillage du domaine, ils introduisent un critère arbitraire portant sur la taille des mailles. Des mailles dont la taille est fixée à 10 nm sont ainsi utilisées dans le calcul. Ce choix purement arbitraire n'est pas clairement justifié. Physiquement, on pourrait le rapprocher à l'épaisseur de la double couche électrique, mais dans ce cas une dépendance de la taille des mailles à la conductivité électrique de la goutte doit être apportée. En réalité, le traitement de la singularité numérique pour l'estimation correcte du champ électrique au point triple reste un enjeu de modélisation. L'utilisation d'éléments finis singuliers est une des pistes avancées [Pashos 2008]. En dépit d'un choix arbitraire portant sur la taille des mailles, le modèle de Drygiannakis permet de prévoir de manière très satisfaisante la survenue du phénomène de saturation. Un tel modèle nous aurait donc probablement permis de disposer de plus de précision dans l'estimation des contraintes électriques surfaciques, néanmoins il ne constituait pas une priorité et nous nous sommes finalement contentés d'un modèle simplifié. Pour la suite néanmoins, nous reprendrons cette valeur arbitraire de taille de maille de 10 nm. Un maillage aussi fin empêche cependant toute modélisation 3D.

Conclusion de la partie B :

Cette partie a permis de présenter et d'évaluer un modèle numérique destiné à caractériser le champ électrique dans la configuration d'électromouillage que nous utilisons. Sa validation a pu se faire en comparant les valeurs de champ électriques dans le diélectrique telles que fournies par un modèle capacitif ainsi qu'en comparant les valeurs de tension effective d'électromouillage numériques et expérimentales. Le modèle a permis de répondre à certaines de nos questions à savoir où et comment se répartit le champ électrique dans notre système. Ainsi, on a pu observer que le champ électrique se concentre aux points triples où il atteint une valeur extrêmement élevée. Malheureusement à cet endroit, il présente une singularité, et de plus, la géométrie de la goutte utilisée dans le modèle est approximative. Ces deux raisons font qu'il est très difficile d'évaluer les grandeurs électriques surfaciques, celles-ci étant concentrées au voisinage du point triple. Malgré ces limites, le modèle sera utilisé dans la partie suivante pour estimer la contrainte électrique tangentielle, la précision de cette dernière étant d'autant meilleure que l'on s'éloigne du point triple.

Partie C : Exploration de l'électrohydrodynamique de type Taylor-Melcher

L'expérience de Taylor-Melcher (TM) a déjà été évoquée et succinctement présentée dans le chapitre 1. Nous revenons un peu plus en détail sur cette expérience car elle fait intervenir explicitement le bilan de quantité de mouvement tangentielle, de nature électrique, et potentiellement responsable des recirculations hydrodynamiques que nous observons en goutte.

L'expérience de TM nous apprend que lorsqu'une interface fluide chargée électriquement est soumise à un champ électrique tangentiel, une contrainte de cisaillement apparaît se traduisant par un écoulement hydrodynamique. L'objectif original de cette partie consiste à examiner si ce principe s'applique avec une goutte activée par électromouillage. Cela passe par l'estimation locale de la contrainte électrique tangentielle. Etant donné les limites de la modélisation numérique exposées dans la partie précédente, il nous a semblé intéressant de présenter des résultats expérimentaux obtenus à partir de l'expérience de TM, et qui permettent ici d'enrichir notre analyse sur le rôle des contraintes électriques tangentielles.

Pour l'expérience en cuve de Taylor-Melcher, nous disposons d'un modèle analytique sur lequel nous appuyer. L'expérience de TM est modifiée afin de se rapprocher des conditions expérimentales en électromouillage AC. Ainsi, nous essayons de produire un écoulement avec une solution aqueuse, une électrode passivée et un signal alternatif. Puis le phénomène est étudié par la simulation numérique en reprenant le modèle de la partie B et en l'adaptant dans une configuration d'étude permettant d'estimer plus facilement la contrainte électrique tangentielle à la surface de la goutte.

Les observations expérimentales et le recours à la simulation numérique permettent de conclure quant à l'implication des contraintes tangentielles de Maxwell dans le phénomène de recirculation.

1. Ecoulement quadripolaire induit par l'électrohydrodynamique tangentielle

Alors que le phénomène d'écoulement venait tout juste d'être observé, l'une des raisons qui nous a poussés à considérer les contraintes électriques tangentielles à la surface des gouttes repose sur les observations faites par Taylor et Melcher (1969). Dans leur étude, une goutte d'huile est soumise à un champ électrique est le siège de recirculations hydrodynamiques dont la configuration d'écoulement quadripolaire ressemble très fortement à celle que nous observons sur nos gouttes activées par électromouillage (Fig. 74).

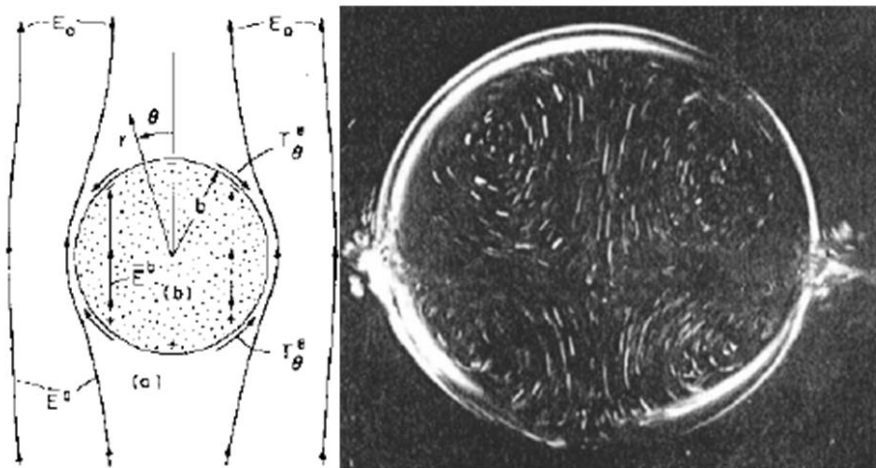


Fig. 74 Ecoulement hydrodynamique produit par l'action de contraintes électriques tangentielles à la surface d'une goutte. La configuration du champ électrique est représentée à gauche ; la configuration d'écoulement est représentée à droite. Images tirées de [Melcher and Taylor 1969].

Le champ électrique est constant loin de la goutte. Celle-ci, soumise à sa composante normale, se charge en surface. Sous l'action de la composante tangentielle du champ, la surface de la goutte est alors le siège de contraintes électriques tangentielles qui créent l'écoulement. L'action de ces contraintes électriques tangentielles n'a été que très peu étudiée dans la littérature [Zeng 2006] et bien que notre configuration d'étude soit différente de la configuration de Taylor et Melcher, ces contraintes électriques se présentent comme un mécanisme possible pour expliquer les structures d'écoulement quadripolaires au sein d'une goutte observée en configuration d'électromouillage. Nous partons alors de l'expérience fondatrice de Taylor et Melcher en cuve que nous modifions afin de nous rapprocher des conditions expérimentales de l'électromouillage.

2. L'expérience de Taylor-Melcher

a. Présentation de l'expérience

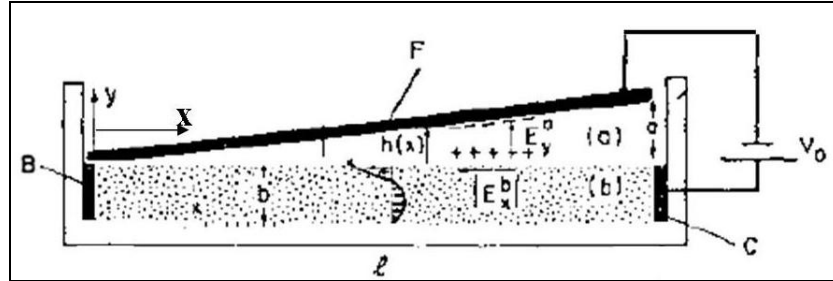


Fig. 75 Schéma représentant l'expérience de TM, tiré de [Melcher and Taylor 1969].

La cuve de longueur l utilisée pour l'expérience est représentée sur la figure 75. Elle comporte deux électrodes latérales B et C et une électrode F dont l'inclinaison est repérée par la distance a . L'inclinaison de l'électrode F permet d'assurer un champ électrique uniforme dans la cuve. Les électrodes B et F sont reliées à la masse. La cuve est remplie d'huile de maïs d'une hauteur b égale à celle des électrodes latérales. La surface libre est surplombée d'air ambiant ; Taylor et Melcher montrent que l'application d'une tension électrique continue entre les électrodes provoque l'apparition d'un écoulement hydrodynamique sous l'effet d'une contrainte électrique tangentielle à la surface. Les données expérimentales sont résumées dans le tableau 9.

Paramètres	l	b	a	V_0	Huile de maïs	
Valeur numérique	24 cm	3,8 cm	3 cm	20 kV	$\epsilon_r = 3,1$	$\eta = 55 \text{ mPa.s}$

Tab. 9 Résumé des conditions expérimentales de l'expérience de Taylor-Melcher.

b. Modèle

Lorsqu'on applique le signal électrique, une charge électrique apparaît spontanément en volume puis disparaît au bout d'un temps comparable au temps de relaxation des charges, $\tau_e = \frac{\epsilon}{\sigma}$. Un modèle permet de retrouver la configuration d'écoulement loin des bords,

observée en régime permanent, lorsque la charge volumique a totalement disparue :

Dans la cuve, le champ électrique est dirigé suivant la direction horizontale et sa valeur est :

$$\mathbf{E}^b = -\frac{V_0}{L} \mathbf{x}. \quad (104)$$

Dans l'air, la composante principale du champ électrique est verticale et sa valeur est :

$$\mathbf{E}^a = \frac{V_0}{a} \mathbf{y} \quad (105)$$

A l'interface, la charge électrique accumulée est donnée par l'équation (39) et la contrainte électrique de Maxwell à la surface de l'huile orientée suivant l'horizontale s'écrit simplement (équation(49)) :

$$\left\| \overline{\mathbf{T}_e} \cdot \mathbf{y} \cdot \mathbf{x} \right\| = -\varepsilon_0 \frac{V_0^2}{La}. \quad (106)$$

On résout alors l'équation de Stokes dans la cuve en stationnaire :

$$0 = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{u} + \rho \mathbf{g}, \quad (107)$$

avec comme conditions limites :

$$u(y=0) = 0, \quad (108)$$

$$\eta \frac{\partial u}{\partial y} \Big|_{y=b} = \varepsilon_0 \frac{V_0^2}{La}, \quad (109)$$

où η est la viscosité dynamique du fluide. Ces conditions limites traduisent la condition d'adhérence au fond de la cuve et le bilan tangentiel de quantité de mouvement à l'interface (équation (44)).

En prenant en compte la recirculation fluide et en considérant la conservation du débit dans la région où le régime est établi, on a de plus :

$$\int_0^c u dy = \int_c^b u dy, \quad (110)$$

où c désigne la hauteur correspondant au changement de sens de l'écoulement. La résolution du problème aboutie à l'expression donnant le champ de vitesse loin des bords de la cuve :

$$u(y) = \frac{-\varepsilon_0 V_0^2 b}{2\eta La} \left[\frac{3}{2} \left(\frac{y}{b} \right)^2 - \left(\frac{y}{b} \right) \right]. \quad (111)$$

L'écoulement produit par le bilan tangentiel de quantité de mouvement se fait de l'électrode C à l'électrode B et la vitesse maximale est atteinte à la surface de la cuve. L'écoulement s'annule et change de sens aux deux tiers de la hauteur de fluide. Le profil de vitesse théorique est représenté par la courbe (Fig. 76).

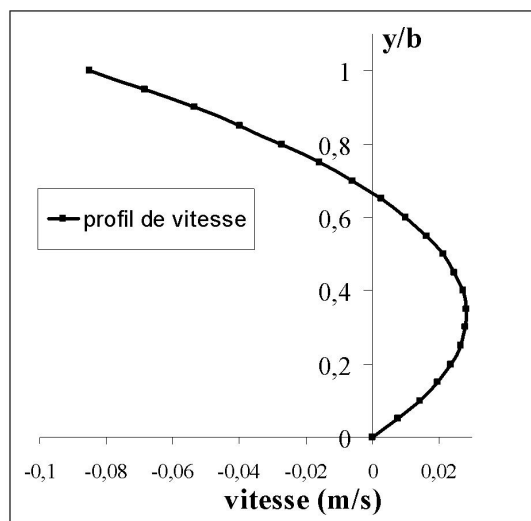


Fig. 76 Représentation du profil de vitesse dans l'expérience de TM loin des bords de la cuve.

c. Reproduction de l'expérience de Taylor et Melcher

Nous reproduisons l'expérience de Taylor et Melcher avec des modifications portant sur la taille de la cuve et l'huile utilisée et qui sont résumées sur le tableau 10.

Paramètres	l	b	a	V₀	Huile de tournesol		
Exp. reproduite	2 cm	1 cm	1 cm	5 kV	$\epsilon_r \approx 3$	$\eta=55 \text{ mPa.s}$	$\rho = 940 \text{ kg/m}^3$

Tab. 10 Conditions expérimentales ayant servie à reproduire l'expérience de Taylor-Melcher.

L'application de la différence de potentiel permet de créer l'écoulement, rendu visible par l'utilisation d'un colorant (Blue Sigma Aldrich). Celui-ci se produit dans le sens prédit par la théorie et le changement de sens à lieu environ aux deux tiers de la hauteur d'huile conformément au modèle.

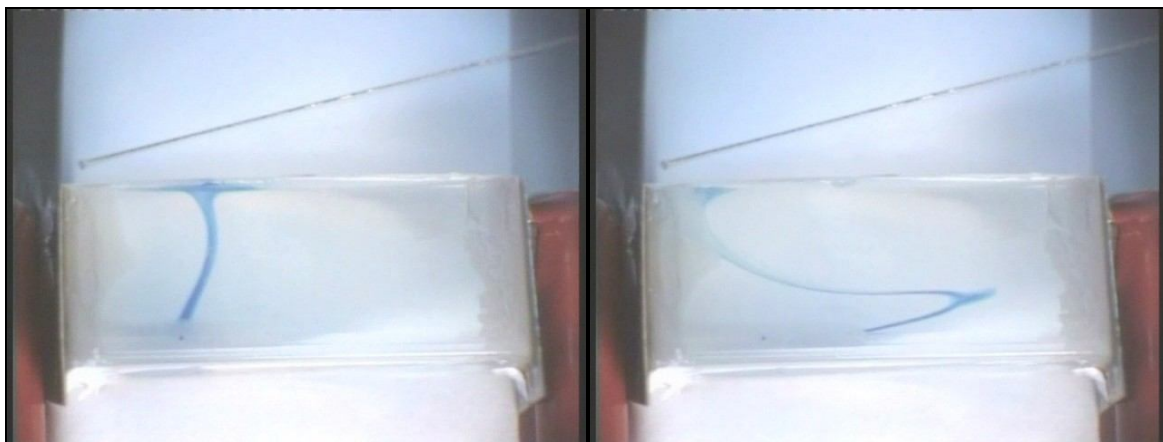


Fig. 77 Reproduction de l'expérience de Taylor et Melcher avec de l'huile de tournesol.

3. Adaptation de l'expérience de Taylor et Melcher

Nous essayons de reproduire l'expérience de TM en nous rapprochant des conditions expérimentales utilisées en gouttes à savoir : un signal électrique alternatif puis un signal électrique alternatif et un liquide conducteur comme le PBS.

a. Utilisation d'un signal électrique alternatif

Les recirculations en goutte sont observées lorsque le signal électrique est alternatif mais pas lorsqu'il est continu. L'expression de la contrainte électrique tangentielle de surface montre que la polarité de la tension appliquée dans l'expérience de TM ne modifie pas le sens de l'écoulement, laissant la possibilité d'envisager l'utilisation d'un signal électrique alternatif. Le signal électrique continu est alors remplacé par un signal alternatif dont l'amplitude maximale est de 2000 V. Les observations, résumées dans le tableau 11 varient suivant la période *T* du signal :

Résultats	
Exp.1 : $T \gg 0,1$ s	L'écoulement est similaire à l'écoulement de référence mais il présente des interruptions périodiques.
Exp.2 : $T \approx 0,1$ s	Le volume fluide oscille dans la direction x . L'amplitude et la période des oscillations diminuent lorsque la fréquence du signal électrique augmente.
Exp.3 : $T \ll 0,1$ s	Pas d'observation visible. Il ne se passe rien.

Tab. 11 Observations expérimentales de l'expérience de TM avec signal électrique alternatif.

Une discussion portant sur les différents temps caractéristiques impliqués, rappelés sur le tableau 12, permet de comprendre les observations faites ; la conductivité électrique de l'huile de tournesol est prise égale à celle de l'huile de maïs, dont la valeur est d'environ 10^{-10} S/m d'après l'article.

temps d'excitation	$T = \frac{1}{f}$	
temps de relaxation des charges	$\tau_e = \frac{\epsilon}{\sigma}$	$\tau_e \approx 0,26s$
temps de dissipation visqueuse	$\tau_\eta = \frac{\rho b^2}{\eta}$	$\tau_\eta \approx 1,7s$

Tab. 12 Temps caractéristiques mis en jeu dans l'expérience de Taylor-Melcher avec signal alternatif.

La comparaison entre la période du signal électrique et le temps de relaxation des charges permet de déterminer si la densité volumique de charge dans la phase liquide est nulle ou non.

i) Dans le cas où la période du signal électrique est très grande devant le temps de relaxation des charges (expérience 1), les charges électriques soumises au champ alternatif ont le temps de se déplacer afin d'assurer l'électroneutralité des parcelles fluides. La densité volumique de charge est alors nulle en régime permanent et l'expérience se déroule dans les mêmes conditions que celles de l'expérience de TM. Toutefois, la contrainte électrique tangentielle n'est plus constante comme cela était le cas avec un signal continu. Au contraire, elle varie au cours du temps avec une amplitude proportionnelle au carré de la tension appliquée. Ainsi, lorsque la tension change de signe, la contrainte tangentielle en surface devient suffisamment faible pour que l'écoulement s'interrompe. On observe alors un écoulement intermittent.

ii) Dans le cas où la période du signal électrique est commensurable ou plus petite que le temps de relaxation des charges, les porteurs de charge n'ont plus le temps de suivre les variations temporelles du champ électrique. Le régime transitoire dans l'équation de conservation de la charge doit être pris en compte et le fluide est le siège d'une densité volumique de charge non nulle. Soumises au champ électrique alternatif, les parcelles fluides subissent en volume une force coulombique (électrophorèse) orientée alternativement suivant x et $-x$. Nous sortons alors du cadre dans lequel l'expérience de TM a traditionnellement lieu. La comparaison entre la période du signal et le temps visqueux produit alors deux cas de figure :

- Si la force coulombique n'oscille pas trop vite par rapport au temps de diffusion visqueuse, les oscillations seront visibles. Les parcelles fluides se déplacent dans le sens de la force électrique (expérience 2).

- Au contraire, si la période du signal électrique est trop petite par rapport au temps visqueux, les oscillations de quantité de mouvement n'ont pas le temps de diffuser en volume et aucun écoulement oscillant n'est observé (expérience 3).

Ces différents cas de figure sont résumés sur la figure 78.

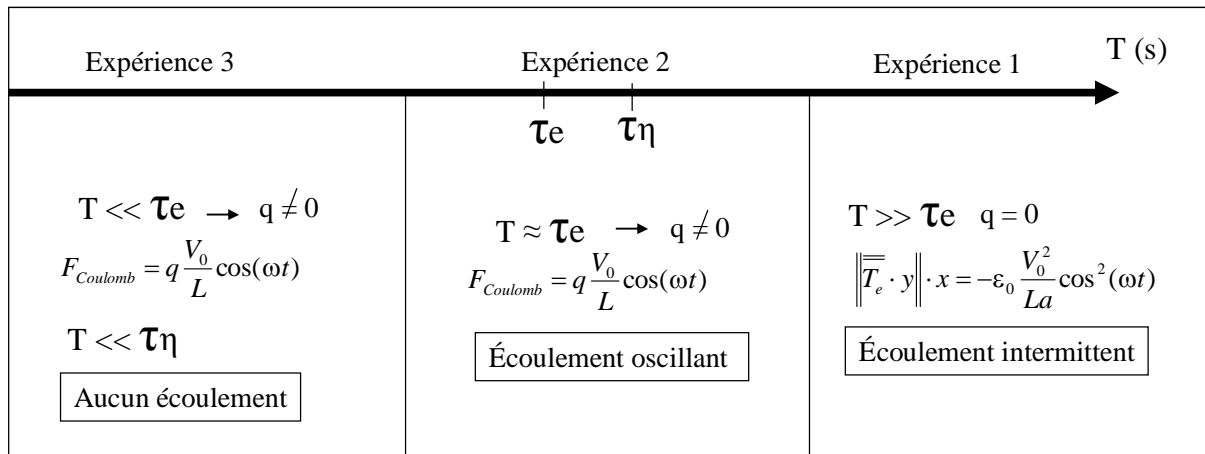


Fig. 78 Représentation des différents temps caractéristiques mis en jeu dans chacune des expériences.

En résumé, il n'est donc pas possible de produire un écoulement stationnaire identique à celui de l'expérience de TM avec un liquide isolant et un signal électrique alternatif. Voyons ce qu'il en est avec l'utilisation d'un liquide conducteur tel que le PBS.

b. Expérience de Taylor et Melcher adaptée

Les valeurs des temps caractéristiques pour le PBS sont représentées dans le tableau suivant :

temps de relaxation des charges	$\tau_e = \frac{\epsilon}{\sigma}$	$\tau_e \approx 4,3 \cdot 10^{-10} s$
temps de dissipation visqueuse	$\tau_\eta = \frac{\rho b^2}{\eta}$	$\tau_\eta \approx 100s$

Tab. 13 Temps caractéristiques mis en jeu dans l'expérience de Taylor-Melcher adaptée avec du PBS et un signal alternatif.

La conductivité électrique élevée du PBS assure la disparition instantanée de la charge volumique dans la gamme de fréquence d'étude (100 à 3000 Hz). Le problème observé dans les expériences 2 et 3 sera donc évité. Pour empêcher l'électrolyse de l'eau, nous sommes amenés à passiver l'une des électrodes (Fig. 79). Le milieu isolant évite le contact direct du liquide avec les deux électrodes et empêche ainsi la réaction d'électrolyse de se produire. Avec l'utilisation d'un signal alternatif, d'un liquide conducteur et d'un milieu isolant, les modifications que nous avons apportées à l'expérience de TM sont semblables à celles réalisées par T.B Jones concernant l'expérience de Pellat [Jones, Wang et al. 2004].

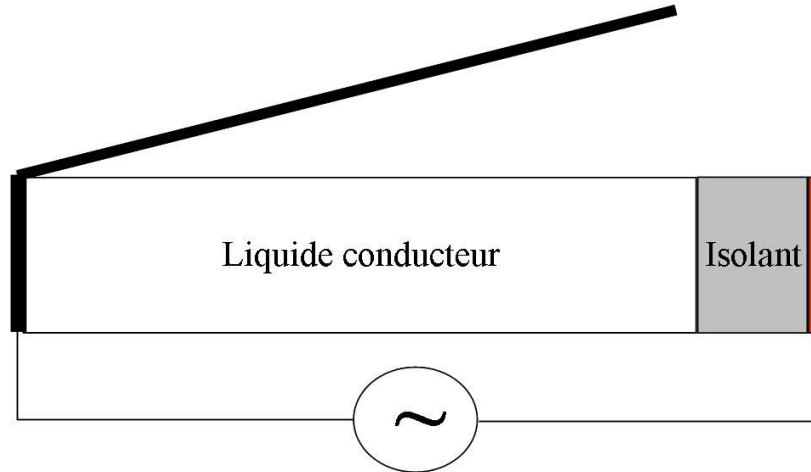


Fig. 79 Schéma de l'expérience de TM 'adaptée' avec un liquide conducteur, un signal électrique alternatif et un milieu isolant.

L'ajout d'un milieu diélectrique modifie le champ électrique dans le liquide et influe donc sur la valeur de la contrainte électrique responsable de l'écoulement. Pour estimer la contrainte, il suffit de déterminer la part du champ électrique traversant effectivement le liquide. Pour cela nous considérons le montage électrique équivalent (Fig. 80) et nous calculons sa fonction de transfert. La détermination du potentiel électrique à l'interface entre le diélectrique et le liquide conducteur V_s permettra le calcul du champ électrique tangentiel dans le liquide.

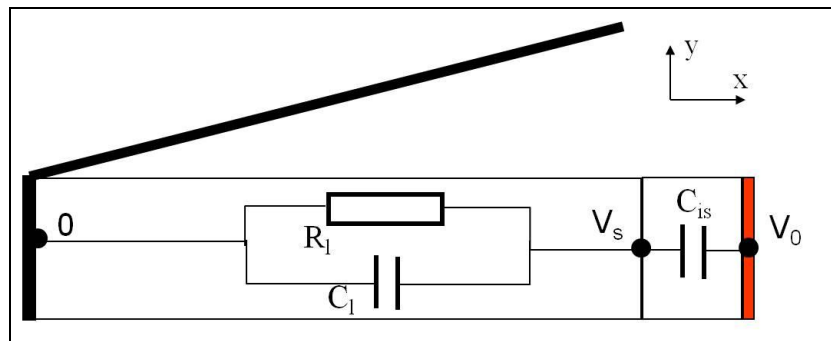


Fig. 80 Montage électrique équivalent de l'expérience de Taylor-Melcher 'adaptée'.

Les impédances complexes sont définies par :

$$Z_{C_{is}}^* = \frac{1}{jC_{is}\omega}, \quad (112)$$

$$Z_{C_l}^* = \frac{1}{jC_l\omega}, \quad Z_{R_l}^* = R_l, \quad (113)$$

où les grandeurs électriques sont reliées aux propriétés électriques et aux dimensions géométriques par les relations :

$$C = \epsilon \frac{S}{e}, \quad (114)$$

$$R = \frac{e}{\sigma S}, \quad (115)$$

ϵ et σ étant la conductivité électrique et la permittivité électrique respectivement, e et S l'épaisseur (suivant la direction \mathbf{x}) et la surface relative à chaque milieu respectivement.

La phase liquide schématisée par une résistance et une capacité électrique a une impédance complexe équivalente égale à :

$$Z_{\text{EQL}}^* = \frac{R_l}{1 + jR_l C_l \omega}, \quad (116)$$

Si bien que l'expression de la fonction de transfert H^* est :

$$H^* = \frac{V_s^*}{V_e^*} = \frac{\frac{1}{1 + \frac{C_l}{C_{is}}}}{1 - \frac{j}{R_l(C_{is} + C_l)\omega}}. \quad (117)$$

En définissant la pulsation de coupure ω_c et la pulsation réduite X :

$$\omega_c = \frac{1}{R_l(C_l + C_{is})}, \quad (118)$$

$$X = \frac{\omega}{\omega_c}. \quad (119)$$

La fonction de transfert se réécrit :

$$H^* = \frac{\frac{1}{1 + \frac{C_l}{C_{is}}}}{1 - \frac{j}{X}}. \quad (120)$$

Le gain, exprimé en décibel, $G_{\text{db}}(\omega)$, et la phase $\psi(\omega)$ de la fonction de transfert, permettent de déterminer l'amplitude de la tension aux bornes du liquide et son retard éventuel :

$$G_{\text{db}}(\omega) = 20\text{Log}(|H^*|) = 20\text{Log}\left(\frac{\frac{1}{1 + \frac{C_l}{C_{is}}}}{\sqrt{1 + \frac{1}{X^2}}}\right), \quad (121)$$

$$\psi(\omega) = \arg(H^*) = \arctan\left(\frac{1}{X}\right). \quad (122)$$

La représentation de ces fonctions sur le diagramme de Bode permet de visualiser le comportement électrique du montage en fonction de la fréquence :

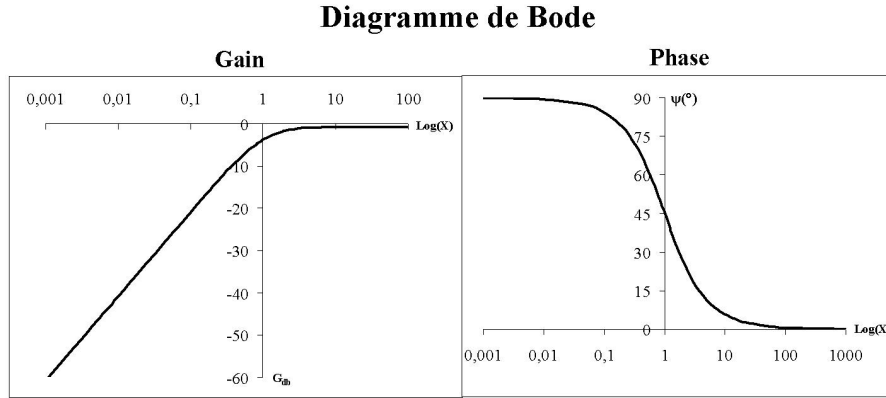


Fig. 81 Diagramme de Bode du montage électrique équivalent.

Le système se comporte comme un filtre passe haut :

Pour des fréquences égales ou supérieures à la fréquence de coupure, le champ électrique se répartit entre le diélectrique et le liquide. Sa valeur efficace est donnée par l'expression :

$$E = -G(\omega) \frac{V_0}{L\sqrt{2}} x. \quad (123)$$

La contrainte électrique tangentielle moyenne s'écrit alors :

$$\|T_e \cdot y\| \cdot x = -\epsilon_0 G^2(\omega) \frac{V_0^2}{2La}. \quad (124)$$

A l'inverse, pour des fréquences inférieures à la fréquence de coupure, le champ électrique est confiné dans le diélectrique et sa valeur dans le liquide est nulle.

La fonction de transfert permet de quantifier la valeur de la contrainte tangentielle pour n'importe quelle fréquence.

d. Expérience

L'expérience de Taylor-Melcher adaptée est réalisée dans des conditions expérimentales qui se rapprochent de celles que l'on rencontre en goutte : le liquide est du PBS et la fréquence du signal électrique est de 3 kHz. Des billes de verre sont utilisées comme traceur de l'écoulement. Les conditions expérimentales sont résumées dans le tableau 14.

Paramètres	l	b	a	V ₀	kapton	PBS	
Exp. Modifiée	2 cm	1 cm	1 cm	2 kV	ε _r = 3,5 e _{is} = 80 μm	ε _r = 78,5 σ = 1,6 S/m	η = 1 mPa.s

Tab. 14 Conditions expérimentales utilisées pour l'expérience de Taylor-Melcher adaptée.

Le calcul de la fréquence de coupure électrique f_c donne dans notre configuration :

$$f_c = \frac{\omega_c}{2\pi} = \frac{1}{2\pi \left(\frac{\epsilon l}{\sigma e_{is}} + \frac{\epsilon}{\sigma} \right)}, \quad (125)$$

$$fc \approx 30\text{MHz} . \quad (126)$$

En dessous de cette fréquence de coupure on doit donc s'attendre à ce que la contrainte électrique tangentielle soit nulle. En particulier, pour une fréquence de travail typique de l'électromouillage (3 kHz) sa valeur est égale à :

$$\left\| \overline{\mathbf{T}_e} \cdot \mathbf{y} \right\| \cdot x = -\varepsilon_0 G^2(\omega) \frac{V_0^2}{2La} = 7,45^{-10} \text{ Pa} . \quad (127)$$

En comparaison, cette grandeur atteint la valeur de 0,49 Pa dans l'expérience de Taylor-Melcher. Autrement dit la contrainte tangentielle a disparu avec l'utilisation d'un liquide conducteur et d'un isolant. La fréquence du signal électrique est trop faible pour que le champ électrique tangentiel puisse traverser le diélectrique. On se souvient que pour reproduire l'expérience de Pellat, TB Jones avait dû employer un signal alternatif supérieur à la fréquence de coupure de son système (jusqu'à 20 kHz avec de l'eau ultra-pure).

Au vue de la valeur de la contrainte tangentielle, on s'attend à ce qu'il n'y ait pas d'écoulement observé mais étonnamment, l'application de la tension électrique alternative a pour effet d'une part de déformer la courbure de la surface du liquide, d'autre part de générer un écoulement désorganisé visible en surface à travers le mouvement de billes de verre. Lorsque l'on diminue la fréquence, on observe des ondes osciller à la surface du liquide. Ces oscillations sont différentes de celles observées pour l'huile : elles ne se font pas suivant la direction \mathbf{x} mais suivant la direction \mathbf{y} et ne sont visibles qu'à l'interface du liquide. En appliquant un signal continu, l'interface se courbe mais aucun écoulement ni aucune oscillation ne sont observés.

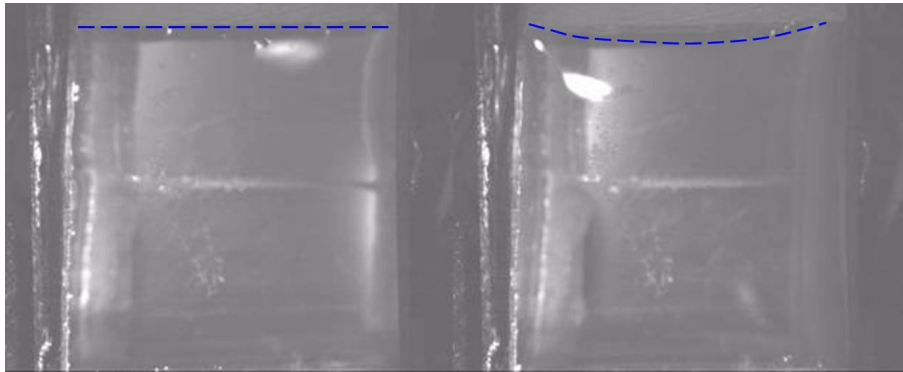


Fig. 82 Vue de dessus de la cuve contenant le PBS et des traceurs. A gauche : état initial ; à droite : après application du potentiel électrique ($f = 3 \text{ kHz}$). Le changement de courbure est visible à travers le changement du reflet à la surface ainsi que sur le bord de la cuve (en pointillés). Figure tirée de [Malk, Davoust et al. 2007].

Ainsi nous voyons que l'écoulement produit dans l'expérience de Taylor-Melcher adaptée ne peut pas provenir de l'action des contraintes électriques tangentielles car le modèle montre que celles-ci sont nulles à la surface du liquide. Au contraire un autre phénomène apparaît et pourrait être à l'origine de recirculations : il s'agit des oscillations de l'interface.

4. Configurations en goutte

Vérifions maintenant si des contraintes électriques tangentielles apparaissent en configuration en goutte lors des expériences d'électromouillage. En goutte, un modèle basé sur les approches de type circuit électrique équivalent ne permettrait pas d'estimer la contrainte électrique tangentielle de surface. On a alors recours à la simulation numérique et plus particulièrement au modèle développé dans la partie précédente.

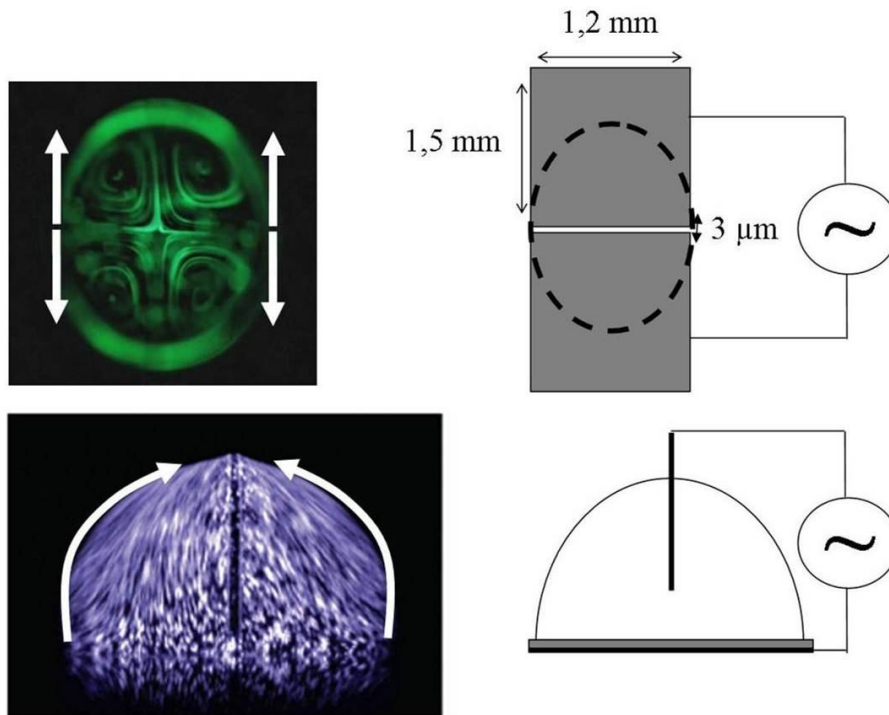


Fig. 83 Écoulement induit dans une goutte activée par électromouillage dans deux configurations différentes : la configuration coplanaire (en haut) et la configuration à électrode plongeante (en bas). Les flèches blanches représentent les contraintes électriques tangentielles supposées agir sur la goutte.

Les premières observations d'écoulements avaient été réalisées sur le motif à électrodes rectangulaires représenté sur la figure 83 et une structure quadripolaire avait été observée. Cependant des écoulements en configuration avec électrode plongeante ont également été observés ainsi qu'avec le motif à électrodes hémicirculaires utilisé dans la partie A et B. Pour chacune de ces configurations, en dépit de structures d'écoulement qui diffèrent, des caractéristiques communes sont constatées : invariance à la conductivité électrique de la goutte, absence d'écoulement en signal continu ou à des fréquences supérieures à 10 kHz. Pour ces raisons, l'origine des écoulements est très probablement la même. On a donc le choix de la configuration d'étude quand au calcul des contraintes électriques tangentielles.

i) Dans la configuration à électrodes rectangulaires, le sens de l'écoulement suggère que les contraintes électriques tangentielles sont dirigées suivant la direction azimutale ce qui nécessiterait un modèle 3D trop volumineux à mettre en place étant donné le maillage de la ligne de contact (Tab. 8).

ii) Les écoulements dans le motif à électrodes hémicirculaires utilisé jusqu'ici seront étudiés plus en détail dans le chapitre suivant et des configurations d'écoulements non axisymétriques seront observées dans certaines conditions pour lesquelles l'orientation des contraintes électriques éventuelles est mal définie.

iii) Le sens d'écoulement observé dans la configuration à électrode plongeante (Fig. 83) suggère que les éventuelles contraintes électriques tangentielles sont orientées suivant la direction ortho-radiale. En raison de son caractère axisymétrique, cette configuration semble donc la plus simple à modéliser numériquement. L'adaptation du modèle de la partie B ne nécessite aucun effort si ce n'est de remplacer les variables spatiales (x,y) par (r,z). Nous utilisons alors cette configuration pour le calcul numérique des contraintes électriques tangentielles, après avoir reproduit l'expérience d'écoulement et s'être assuré que les recirculations sont bien présentes dans cette configuration avec les caractéristiques de nos puces à électromouillage.

La répartition du potentiel électrique dans la goutte est donnée ci-dessous (Fig. 84) :

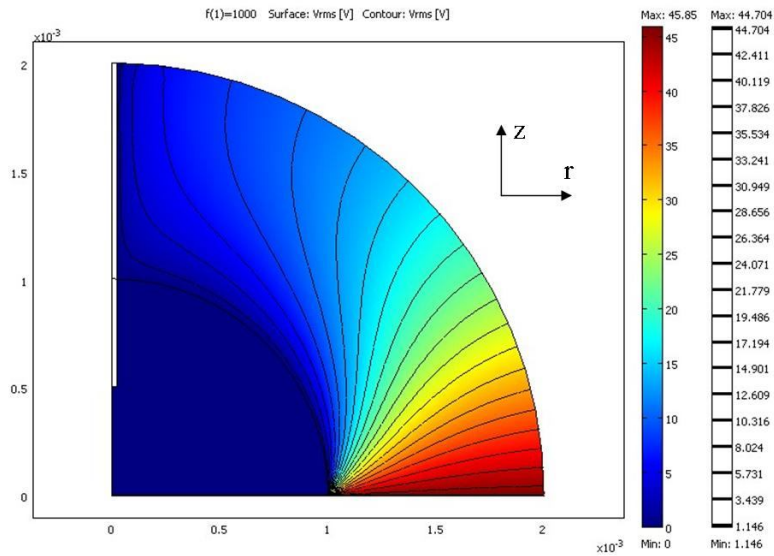


Fig. 84 Calculs numériques sur la configuration à électrode plongeante. L'électrode plongeante est à la masse et le potentiel électrique appliqué est 45,85 Veff.

La goutte est isopotentielle, comme dans la configuration coplanaire ; la différence est qu'ici, elle prend le potentiel de l'électrode avec laquelle elle est en contact. Le champ électrique est repoussé à l'extérieur de la goutte et sa composante tangentielle à l'interface air-liquide est donnée sur la figure 85.

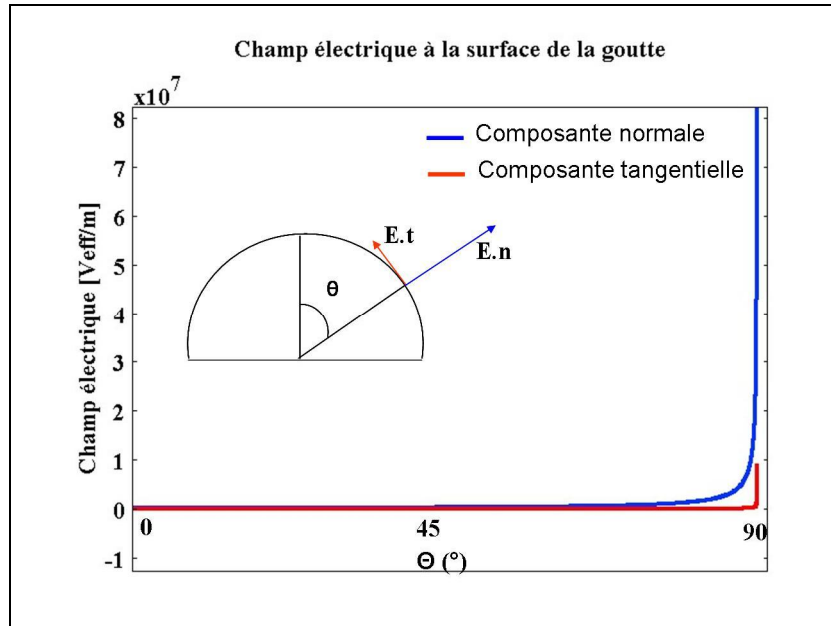


Fig. 85 Champ électrique à la surface de la goutte ; composantes normale et tangentielle.

On constate qu'excepté à l'emplacement de la singularité de calcul, le champ électrique tangential est nul. Le calcul de la tension effective de Taylor-Melcher T_{TM} , grandeur analogue à la tension effective d'électromouillage (équation (94)) mais pour laquelle la projection se fait suivant le vecteur tangent à la surface de la goutte permet de quantifier la contribution du bilan tangential de quantité de mouvement dans la configuration à électrode plongeante suivant la direction ortho-radiale. Son expression est, dans le repère (\mathbf{r}, \mathbf{z}) :

$$\begin{aligned} \langle T_{TM} \rangle &= \int_{S_g} \langle \overline{\overline{\mathbf{T}_e}} \cdot \mathbf{n} \rangle \cdot \mathbf{t} \\ &= \int_{S_g} \frac{1}{2} \text{Re} \left[\frac{1}{2} \varepsilon (E_z^* \cdot \text{Conj}(E_z^*) - E_r^* \cdot \text{Conj}(E_r^*)) n_z + \varepsilon \text{Conj}(E_z^*) \cdot E_z^* n_r \right]. \end{aligned} \quad (128)$$

Comme le montrent les courbes représentées sur la figure 86, la tension effective de Taylor-Melcher pour une goutte de PBS à 3 kHz est extrêmement faible ($5,213 \cdot 10^{-11}$ N/m), comparable à celle produite en cuve avec le même liquide (équation (127)) et 10^9 fois moins importante que sa valeur dans l'expérience référence avec de l'huile (0,11 N/m).

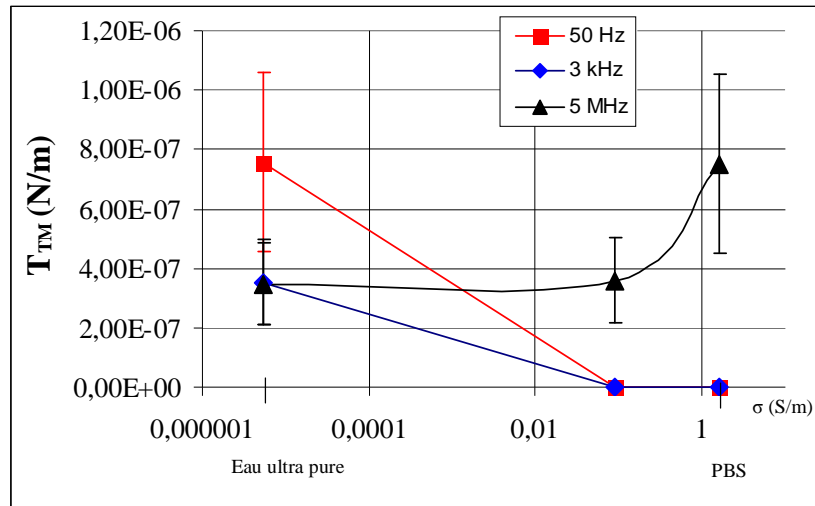


Fig. 86 Contrainte effective tangentielle de Taylor-Melcher dans la configuration en goutte. Les barres d'erreur (30%) tiennent compte des limites du modèle (p.119).

On comprend alors à partir des calculs numériques que les effets tangentiels sont favorisés par des conductivités électriques très faibles et des fréquences très élevées. Or en électromouillage, on utilise des solutions aqueuses de conductivité électrique élevée et des fréquences électriques faibles. On en déduit donc que les effets tangentiels ne sont pas impliqués dans nos recirculations en goutte en configuration d'électromouillage.

Les résultats des différentes expériences et calculs sont résumés sur le tableau 15.

	Signal électrique	Contrainte tangentielle	Oscillations	Écoulement
Expérience de TM	continu	oui	non	oui
Expérience de TM adaptée avec PBS	continu	non	non	non
	alternatif	non	oui	oui
Goutte de PBS	continu	non	non	non
	alternatif	non	oui	oui

Tab. 15 Tableau récapitulatif des expériences montrant la valeur de la contrainte électrique tangentielle en surface et l'observation faite sur les écoulements pour les différentes expériences.

Les résultants marquants des différentes expériences sont d'une part l'observation des écoulements hydrodynamiques alors même que le bilan tangentiel est nul et d'autre part l'observation simultanée d'oscillations de la surface du liquide et des écoulements. Nous avons alors pour la suite recentré notre étude sur le phénomène d'oscillations interfaciales.

5. Régime d'écoulement à très haute fréquence

Au vu des résultats expérimentaux et numériques, les contraintes électriques tangentielles à la surface de la goutte ne semblent pas impliquées dans les écoulements à faibles fréquences. En augmentant la fréquence, on doit s'attendre à ce que le champ électrique pénètre dans la goutte et à ce que le champ électrique tangentiel à la surface de la goutte deviennent de plus en plus significatif ; mais dans le même temps, la charge électrique accumulée à la surface de

la goutte devrait diminuer car le saut de champ électrique normale à l'interface deviendrait plus faible. Les valeurs calculées avec un signal électrique de 5 MHz et de l'eau ultra-pure (fréquence de coupure de 10 kHz environ) montrent néanmoins que la contrainte tangentielle reste à un niveau marginal (Fig. 86). En revanche, avec l'augmentation de la fréquence, des effets électrothermiques interviennent dans la goutte et provoquent un écoulement. Cet écoulement, modélisé numériquement par Lee *et al.* (2009) ainsi que par Garcia *et al.* (2009), est provoqué par un gradient thermique se produisant dans la goutte et correspond à l'écoulement qui avait été observé par Ko *et al.* (2008) dans le régime haute fréquence (128 kHz) et pour lequel les auteurs avaient noté une grande dépendance à la conductivité électrique de la goutte.

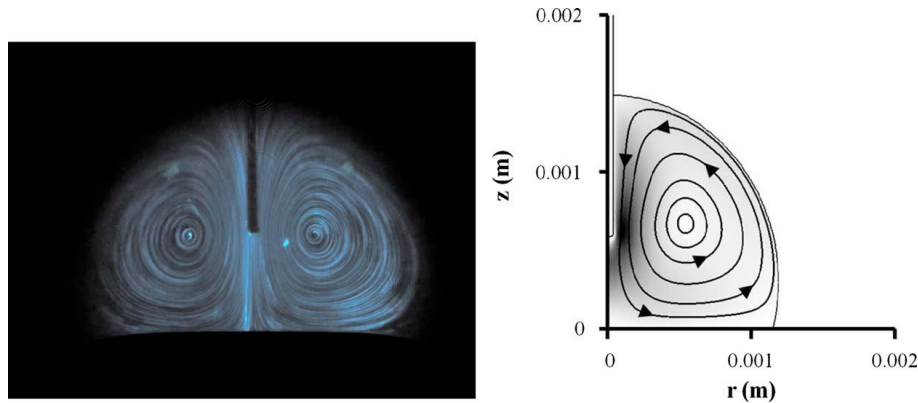


Fig. 87 A gauche : observation des écoulements hautes fréquences. A droite : lignes de courant obtenues par la simulation numérique. Figure tirée de Lee *et al.* (2009).

Ainsi, l'action des forces électriques tangentielles peut être exclue à la fois dans le phénomène d'écoulement basse fréquence (jusqu'à 10 kHz) mais aussi semble-t-il dans le régime d'écoulement haute fréquence (au-delà de la centaine de kHz).

Conclusion de la partie C :

Cette partie reprend certains résultats expérimentaux portant sur l'expérience fondamentale de TM. L'objectif est d'approfondir la compréhension des contraintes électriques tangentielles en vue d'élucider leur rôle éventuel dans les écoulements en goutte. L'expérience de TM fournit un cadre expérimental et théorique idéal. Partant de cette expérience, nous avons reproduit le même type d'écoulement avec une solution aqueuse mais avec un signal alternatif. Le développement d'un modèle associé permet de montrer que la conductivité électrique du liquide est un paramètre déterminant car régissant l'existence de la contrainte tangentielle. Nous avons testé différentes gammes de conductivité allant de l'eau ultra-pure au PBS. Contre toute attente, tandis que le modèle théorique prédit des valeurs de contraintes électriques quasiment nulles dans tous les cas, les expériences montrent qu'un écoulement très désordonné se produit lorsque des signaux alternatifs sont utilisés. Le phénomène s'accompagne d'oscillations de l'interface. Néanmoins, avec le passage à une configuration en goutte et l'utilisation de couches diélectriques d'épaisseurs beaucoup plus faibles, il nous semble un peu trop prématuré d'abandonner la piste des contraintes électriques tangentielles. L'étude s'est donc poursuivie avec une approche numérique pour la configuration en goutte. Le calcul met en évidence l'effet de coin qui permet de disposer d'un champ électrique confiné très intense potentiellement générateur de contraintes tangentielles. En parallèle à ces calculs numériques, le banc d'expérimentation a été amélioré, permettant notamment la visualisation de profil (une nouvelle connectique a dû être développée pour cela...) et l'observation d'oscillations. Le lien a été mis en évidence entre la contrainte électrique normale à la surface de la goutte et l'émergence d'oscillations. Ce phénomène doit alors être approfondi sachant que les calculs numériques en goutte confirment que les contraintes tangentielles restent à un niveau négligeable.

Conclusion du chapitre 3:

Ce chapitre relatif à l'électromouillage et à la caractérisation des contraintes électriques de surface a permis tout d'abord d'étudier le mouillage de la goutte sous champ électrique d'un point de vue expérimental (**partie A**). Les expériences dans l'air ont montré des résultats parfaitement en accord avec la loi de Berge. La configuration d'électrodes coplanaires a pu être caractérisée et l'électromouillage des gouttes réalisé de manière robuste et reproductible. Deux résultats expérimentaux importants ont pu être observés : d'une part l'axisymétrie de mouillage de la goutte montre que l'espace inter-électrodes de 3 μm est négligeable et d'autre part, la lubrification de la surface n'induit aucune variation significative de la capacité électrique sous air. Par ailleurs, les propriétés des puces ont été validées tandis que les paramètres tels que l'épaisseur de la couche hydrophobe ou encore la nature du milieu ambiant ont été fixés pour la suite des travaux.

Dans la **partie B**, un modèle destiné à estimer la répartition du champ électrique dans le système a été mis en place et évalué. Ce modèle a été résolu numériquement et validé par des comparaisons avec des grandeurs expérimentales telles que la tension effective d'électromouillage. Il a permis de comprendre l'influence de l'espace inter-électrodes tandis que l'effet de coin a pu être mis en évidence. En particulier, ce modèle souffre d'une lacune quant à la détermination des contraintes électriques au voisinage de la ligne triple en raison de l'existence d'une singularité sur le champ électrique. En revanche, il conserve sa pertinence en dehors du point triple.

La **partie C** est consacrée à l'étude des contraintes électriques tangentiels. En l'absence d'un modèle numérique plus précis, nous avons jugé utile d'exposer certains résultats expérimentaux portant sur l'expérience de Taylor-Melcher adaptée. Les calculs numériques en goutte tout comme les calculs théoriques dans l'expérience de Taylor-Melcher adaptée montrent que les forces électriques tangentiels sont négligeables tandis qu'un écoulement hydrodynamique est observé ; de plus, dans les deux cas, cet écoulement s'accompagne d'oscillations de la surface du liquide. La partie C du chapitre permet donc d'exclure définitivement l'implication du bilan tangentiel dans le phénomène d'écoulement hydrodynamique. Dans le chapitre suivant, nous focalisons notre effort de recherche sur le rôle des oscillations interfaciales.

CHAPITRE 4 : Oscillations et écoulements hydrodynamiques en goutte

Ce chapitre a pour objectif de montrer comment les écoulements en goutte sont engendrés leurs oscillations de forme.

Une étude du phénomène d'oscillation est entreprise dans la **partie A**. Un modèle est présenté et est confronté aux observations expérimentales. Les données quantitatives extraites grâce au logiciel d'analyse des oscillations serviront à alimenter la partie suivante.

La **partie B** décrit le mécanisme permettant de générer un écoulement hydrodynamique à partir d'oscillations interfaciales. Un modèle d'écoulement est mis en place et résolu par la simulation numérique. La comparaison entre les structures hydrodynamiques observées et les structures d'écoulement calculées permet de conclure sur l'origine des écoulements en goutte.

Enfin, dans la **partie C**, nous reprenons la configuration d'électrodes rectangulaires sur laquelle les écoulements quadripolaires avaient été initialement observés préalablement à la mise en place de cette thèse, ceci afin d'apporter une explication définitive fondée sur le couplage oscillations-écoulement via le concept de courant de dérive.

Partie A : Oscillations de gouttes induites par l'électromouillage

***L**es calculs numériques précédents ont permis d'invalider le rôle moteur des contraintes électriques tangentielles dans le phénomène d'écoulement en goutte. Nous avons donc pris la décision de recentrer notre recherche sur le phénomène d'oscillations en goutte. L'observation d'oscillations de la goutte, jusque là rendue impossible par la méthode de visualisation existante (écoulement observé depuis le dessus, éclairage continu), nous a conduit à modifier notre montage expérimental et à mettre en place un logiciel d'analyse permettant de quantifier ce phénomène (Oscill-EWOD...). Notre décision de réorienter le sujet a été confortée peu après par la publication d'une première étude sur les écoulements en goutte évoquant un lien possible avec des oscillations interfaciales (Ko et al. 2008) suivie d'une deuxième étude portant sur les oscillations en électromouillage (Oh et al. 2008). Cette partie, consacrée aux oscillations, reprend en particulier le même modèle que celui utilisé par Oh et al.(2008), tandis que l'étude expérimentale est adaptée à notre configuration d'électrodes coplanaires et approfondie de manière à disposer d'éléments quantitatifs exploitables dans la partie suivante.*

1. Observations préliminaires

a. Rappel du protocole expérimental

Nous remplaçons la source de lumière continue par une diode électroluminescente (DEL) afin de réaliser un éclairage stroboscopique et visualiser les oscillations. Comme pour les expériences d'électromouillage, la surface de la puce est au préalable lubrifiée. Nous déposons une goutte et appliquons un signal électrique alternatif à l'amplitude et à la fréquence désirées ; la présence de gouttes sacrificielles autour de la goutte principale permet de retarder son évaporation (Fig. 36) et de garder un volume à peu près constant tout au long de l'expérience. La diode est alimentée avec une tension crête-à-crête dont la fréquence est égale à la fréquence du signal alimentant la puce. La configuration d'électrode utilisée et la direction d'observation sont identiques à celles représentées sur la figure 47 : espace inter-électrodes de 3 μm et direction d'observation suivant l'espace inter-électrodes (vue de profil).

b. Importance de la lubrification de la surface

L'une des problématiques expérimentales majeures à laquelle nous nous sommes confrontés concerne la répétabilité du phénomène d'oscillations. Sur une surface de puce sèche, l'électromouillage ne pose pas de problème et la goutte s'étale conformément à la théorie. En revanche, en ce qui concerne les oscillations de goutte, on observe un comportement aléatoire allant d'un phénomène clairement observable à un phénomène très atténué voire à l'absence d'oscillations. Afin de garder les mêmes conditions expérimentales tout au long de l'étude, la puce est systématiquement lubrifiée par un film ultraminece d'huile pour toutes les expériences sous air. Alors que cette étape n'induit pas de modification significative dans les expériences d'électromouillage (Fig. 50), elle est ici indispensable pour assurer un phénomène d'oscillations reproductible. La lubrification de la surface permet de réduire les effets de piégeage de la ligne de contact sur des défauts de surface [Moulinet 2003].

c. Mise en évidence d'oscillations de goutte



Fig. 88 Profils d'une goutte de PBS soumise à des oscillations induites par l'électromouillage. Sont représentés de gauche à droite les modes 4, 6, 10 et 12; les fréquences du signal électrique sont alors de 216, 393, 835 et 1093 Hz respectivement.

L'observation de profil de la goutte avec l'éclairage stroboscopique met en évidence des oscillations sur une très large gamme de fréquence allant de quelques dizaines de Hertz jusqu'à 10 kHz environ. Contrairement à ce que l'on pensait alors jusqu'ici à propos des

expériences d'électromouillage, la goutte oscille y compris à 3 kHz (fréquence de travail en électromouillage) mais les faibles amplitudes d'oscillation à cette fréquence associées à l'utilisation d'une lumière continue rendaient le phénomène imperceptible. L'observation montre que plus la fréquence augmente et plus les amplitudes d'oscillations diminuent (Fig. 88). Dans la suite, nous nous concentrerons sur les oscillations qui se produisent dans la gamme de fréquence située entre 70 Hz et 1100 Hz, pour laquelle les amplitudes sont suffisamment amples pour permettre l'étude et suffisamment diversifiées pour illustrer les différentes caractéristiques du phénomène.

L'observation suivant les directions orthogonales et parallèles à l'espace inter-électrodes montre que les oscillations sont axisymétriques. La goutte oscille avec des formes caractéristiques très marquées qui dépendent de la fréquence (Fig. 88) et qui traduisent différents modes d'oscillations. Pour chaque mode on observe des fréquences de résonance pour lesquelles l'amplitude d'oscillation est maximale. Afin de faciliter l'étude de ces modes, nous introduisons le critère d'identification suivant : le mode oscillant de degré k correspond à un nombre de lobes k comptés le long du contour formé de la goutte et de son symétrique par rapport au plan de mouillage (Fig. 89). La justification de ce critère sera donnée par la suite.

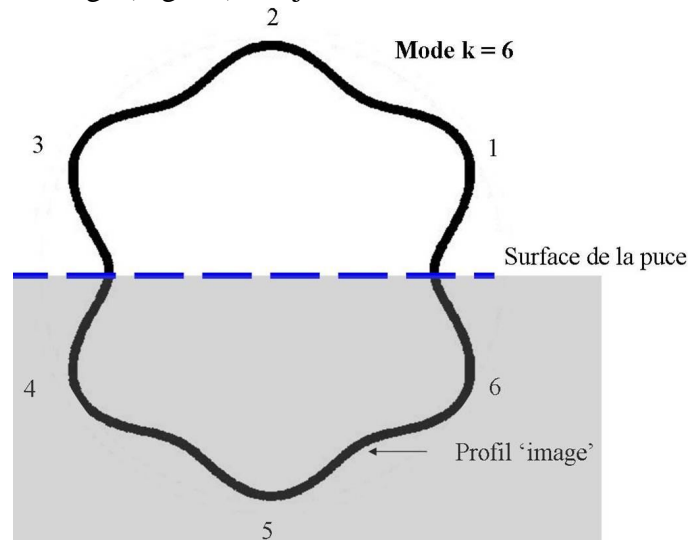


Fig. 89 Critère d'identification des modes oscillants ; ici, le mode 6 est schématiquement représenté.

Ainsi, au vu des premières observations, il apparaît très clairement que la goutte est en oscillations forcées et que les modes d'oscillations sont liés à la fréquence du signal électrique. La détermination des modes oscillants et des fréquences de résonance font l'objet des modèles qui suivent.

2. Modèles d'oscillations de goutte

a. Calcul des fréquences de résonance d'une goutte

Le problème d'oscillations de goutte a d'abord été traité par Rayleigh (1879) et Kelvin (1890) au 19^{ème} siècle. Les travaux concernaient les oscillations libres d'une sphère liquide dans le vide. Peu après, Lamb calcule les fréquences de résonance d'une sphère liquide (masse volumique ρ_i) soumise à des oscillations de faible amplitude et immergée dans un autre milieu fluide (masse volumique ρ_e).

Afin de pouvoir réutiliser le modèle linéaire développé par Lamb, on suppose que les oscillations sont de faibles amplitudes et nous considérons que la goutte posée sur le support correspond à la moitié supérieure d'une sphère liquide en oscillation (Fig. 89).

En négligeant les effets visqueux, l'écoulement est irrotationnel et la vitesse s'écrit sous la forme :

$$\mathbf{u} = -\nabla\Phi, \quad (129)$$

où Φ est le potentiel des vitesses.

De plus, l'écoulement étant incompressible, on a :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (130)$$

$$\Delta\Phi = 0. \quad (131)$$

Le potentiel de vitesse est donc une fonction harmonique. Dans le cas où la géométrie du domaine d'étude comporte des frontières sphériques, la solution de l'équation (131) s'écrit simplement sous forme de combinaisons linéaires d'harmoniques sphériques. La solution se simplifie davantage en cas de configuration axisymétrique, ce qui est le cas d'après nos observations, et les vecteurs propres de la solution sont les polynômes de Legendre (Annexe 2).

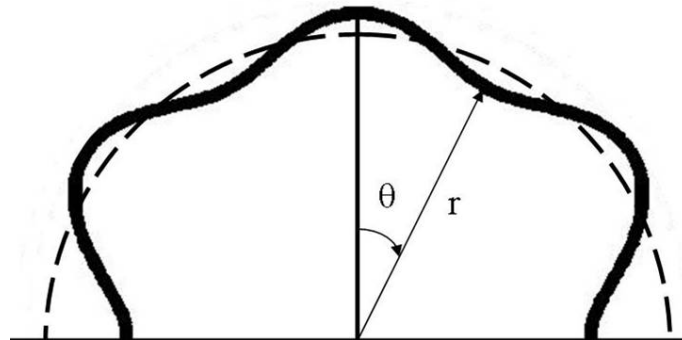


Fig. 90 Système de coordonnées utilisé.

Dans le cas d'oscillations sinusoïdales, à la résonance du mode k , le profil de la goutte s'écrit dans le repère (r, θ) (Fig. 90) :

$$r = R_0 + \sum_{k \geq 2} A_{k0} \sin(\xi_{k0}t + \psi_{k0}) P_k(\cos(\theta)), \quad (132)$$

où ξ_{k0} est la pulsation de résonance du mode k , A_{k0} et ψ_{k0} l'amplitude de l'oscillation et le déphasage, respectivement, et P_k le polynôme de Legendre de degré k . Le rayon moyen R_0 est calculé avec l'expression :

$$R_0 = \left(\frac{3V_{ol}}{2\pi} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (133)$$

Il s'agit du rayon d'une demi-sphère de volume V_{ol} . La vitesse normale à la surface de la goutte s'écrit [Lamb 1932] :

$$\frac{\partial r}{\partial t} = -\frac{\partial \Phi^i}{\partial r} \Big|_{r=R_0} = -\frac{\partial \Phi^e}{\partial r} \Big|_{r=R_0}, \quad (134)$$

où les exposants i et e désignent l'intérieur et l'extérieur de la goutte respectivement. L'expression des potentiels de vitesse se déduit des relations (131), (132) et (134) :

$$\Phi^i = -\sum_k \frac{A_{k0} \xi_{k0} R_0}{k} \frac{r^k}{R_0^k} P_k(\cos(\theta)) \cos(\xi_{k0} t + \psi_{k0}), \quad (135)$$

$$\Phi^e = \sum_k \frac{A_{k0} \xi_{k0} R_0}{k+1} \frac{R_0^{k+1}}{r^{k+1}} P_k(\cos(\theta)) \cos(\xi_{k0} t + \psi_{k0}). \quad (136)$$

Par ailleurs, le potentiel de vitesse et la pression dans le liquide sont reliés par la relation de Bernoulli linéarisée, valable pour de petites déformations [Bostwick and Steen 2009]. Elle s'écrit :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} \Big|_{r=R_0} = \frac{p}{\rho}, \quad (137)$$

où p et ρ désignent la pression et la masse volumique. Le saut de pression à l'interface est donc donné par l'expression :

$$p^e - p^i = -A_k \xi_{k0}^2 R_0 P_k(\cos(\theta)) \sin(\xi_{k0} t + \psi_{k0}) \left(\frac{\rho^e}{k+1} + \frac{\rho^i}{k} \right). \quad (138)$$

Enfin, la loi de Laplace reliant la courbure de la goutte au saut de pression interfacial en négligeant les effets visqueux s'écrit :

$$p^e - p^i = \gamma \nabla \cdot \mathbf{n}. \quad (139)$$

où \mathbf{n} est la normale à la surface de la goutte orientée vers l'extérieur. Son expression, dans le cas où la goutte a le profil de l'équation (132) est donnée par Shaw et *al.* (2009) :

$$\nabla \cdot \mathbf{n} = \frac{2}{R_0} + \sum_k (k+2)(k-1) \frac{A_{k0}}{R_0^2} \sin(\xi_{k0} t + \psi_{k0}) P_k(\cos(\theta)). \quad (140)$$

A partir des relations (138), (139) et (140), on déduit que :

$$\xi_{k0} = \sqrt{\gamma \frac{(k+1)(k+2)(k-1)k}{R_0^3 (\rho^e k + \rho^i (k+1))}}. \quad (141)$$

Pour une goutte d'eau oscillant dans l'air, étant donné que $\rho^i \gg \rho^e$, on a alors :

$$\xi_{k0} = \sqrt{\gamma \frac{(k+2)(k-1)k}{\rho^i R_0^3}}. \quad (142)$$

Il s'agit de l'expression des pulsations de résonance des différents modes suivant lesquels oscille la goutte. On note que plus la goutte est petite, et plus la fréquence de résonance du mode k est grande.

b. Modèle d'oscillations forcées par l'électromouillage

Nous reprenons le modèle d'oscillations développé par Oh *et al.* (2008) afin d'étudier le cas d'oscillations forcées par l'électromouillage en régime alternatif. Tout comme pour le modèle précédent, le système étudié est une sphère composée de la goutte posée sur un support et de son image par rapport au plan du support. On fait l'hypothèse d'oscillations de faibles amplitudes. On néglige les effets de dissipation induits par le frottement de la ligne de contact sur la surface de la puce ainsi que les effets d'hystérésis de l'angle de contact. Ces hypothèses seront par la suite discutées.

La dynamique oscillatoire de la goutte est alors régie par le bilan normal de quantité de mouvement à l'interface (équation (43)) :

$$\gamma \nabla \cdot \mathbf{n} = \left\| \overline{(\mathbf{T}_h \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| + \left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\|,$$

où \mathbf{n} est la normale à la surface de la goutte orientée vers l'extérieur. Le membre de gauche désigne la pression capillaire, le premier membre de droite, le saut de contrainte hydrodynamique à l'interface et le dernier terme représente le saut de contrainte électrostatique à l'interface. Le détail de ces trois termes permet d'écrire l'équation différentielle à laquelle satisfont les amplitudes d'oscillations de la goutte.

En ce qui concerne le terme de contrainte électrostatique, la distribution du champ électrique à la surface de la goutte (Fig. 72) a montré que l'on peut raisonnablement considérer qu'il s'agit d'une source ponctuelle qui s'applique au point triple et qui s'annule partout ailleurs. On peut donc l'exprimer à l'aide d'une distribution de Dirac sous la forme :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| = T_e(t) \delta(\cos(\theta)), \quad (143)$$

où δ est définie par :

$$\begin{aligned} \delta(\cos(\theta)) &= 0 \text{ si } \theta \neq \frac{\pi}{2}, \\ &= 1 \text{ si } \theta = \frac{\pi}{2}. \end{aligned} \quad (144)$$

L'expression de la distribution δ sur la base formée par les polynômes de Legendre s'écrit :

$$\delta(\cos(\theta)) = \sum_k d_k P_k(\cos(\theta)), \quad (145)$$

et les composantes d_k se calculent à l'aide du produit scalaire (projection sur la base de polynômes de Legendre orthogonaux) :

$$d_k = \frac{2k+1}{2} \int_{-1}^1 \delta(\mu) P_k(\mu) d\mu = \frac{2k+1}{2} P_k(0). \quad (146)$$

Par ailleurs, la contrainte électrique étant proportionnelle au carré du signal imposé, sa forme dans le cas d'un signal électrique alternatif de pulsation ω est donc en $\cos^2(\omega t)$. L'expression (143) devient donc :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_e \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| = T_e \cos^2(\omega t) \sum_k \frac{2k+1}{2} P_k(0) P_k(\cos(\theta)). \quad (147)$$

De plus, la variation de pression capillaire induite par les déformations a_k de la goutte s'écrit (équation (140)) :

$$\gamma \nabla \cdot \mathbf{n} = \gamma \sum_k (k+2)(k-1) \frac{a_k}{R_0^2} P_k(\cos(\theta)). \quad (148)$$

Quand au calcul détaillé du terme de contrainte hydrodynamique, il est donné par Plesset (1954) et repris dans les travaux de Prosperetti (1974). Dans le cas où la goutte est entourée d'un fluide peu dense et peu visqueux, son expression est :

$$\left\| \overline{(\mathbf{T}_h \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}} \right\| = \sum_k \left(\rho \frac{\ddot{a}_k}{k} R_0 + 2\eta \frac{(k-1)(2k+1)}{k} \frac{\dot{a}_k}{R_0} \right) P_k(\cos(\theta)). \quad (149)$$

Le bilan normal de quantité de mouvement décrivant l'équation d'oscillation du mode k , s'écrit donc finalement compte tenu des équations (148), (149) et (147) :

$$\ddot{a}_k + \frac{2\eta(k-1)(2k+1)}{\rho R_0^2} \dot{a}_k + \gamma \frac{k(k-1)(k+2)}{\rho R_0^3} a_k = T_e \frac{k(2k+1)}{2\rho R_0} P_k(0) \cos^2(\omega t). \quad (150)$$

Il s'agit de l'équation d'un résonateur fluide en oscillations forcées. Le premier terme représente les effets inertiels. Le second terme est relatif aux effets dissipatifs volumiques induit par la viscosité de la goutte. On remarque ainsi que l'on a appliqué la théorie des écoulements irrotationnels (équation (129)) avec un liquide visqueux. On parle ainsi de théorie des écoulements potentiels visqueux [Padrino, Funada et al. 2008]. Le troisième terme dans le membre de gauche est relatif aux oscillations propres de la goutte calculées précédemment (équation (142)). Enfin, le membre de droite représente le terme forçant provenant de l'évolution temporelle de la force d'électromouillage. L'équation (150) se réécrit :

$$\ddot{a}_k + 2b_k \dot{a}_k + \xi_{k0}^2 a_k = F_k \cos^2(\omega t), \quad (151)$$

avec ξ_{k0} , b_k et F_k la pulsation de résonance propre, le terme d'amortissement et l'amplitude du terme forçant du mode k respectivement. Il s'agit d'une équation différentielle du second ordre à coefficients constants et second membre non nul. La solution générale comporte deux termes $a_{\alpha k}$ et $a_{\beta k}$ représentant respectivement les régimes transitoires et permanents :

$$a_k = a_{\alpha k} + a_{\beta k}. \quad (152)$$

Le régime transitoire est donné par la solution de l'équation homogène et s'écrit :

$$a_{\alpha k} = A_{\alpha k} e^{-b_k t} \cos(\sqrt{(\xi_{k0}^2 - b_k^2)t + \psi_{\alpha k}}), \quad (153)$$

où $A_{\alpha k}$ et $\psi_{\alpha k}$ sont des constantes qui se déterminent en fonction des conditions initiales. Ce terme disparaît au bout d'un temps caractéristique $\tau_{\eta k} = \frac{1}{b_k}$, et les oscillations sont alors uniquement forcées par le second membre. On recherche une solution particulière de l'équation (151) sous la forme :

$$a_{\beta k} = A_k \cos^2(\omega t + \psi_k). \quad (154)$$

En injectant l'expression (154) dans l'équation (151) on trouve après développement :

$$A_k = \frac{F_k}{\sqrt{(\xi_{k0}^2 - (2\omega)^2)^2 + (2b_k 2\omega)^2}}, \quad (155)$$

$$\psi_k = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{2b_k 2\omega}{(2\omega)^2 - \xi_{k0}^2} \right). \quad (156)$$

A la résonance du mode k, l'amplitude d'oscillation est maximale et vaut :

$$A_{k0} = \frac{F_k}{2b_k \xi_{k0}}, \quad (157)$$

tandis que le déphasage entre les oscillations et le signal électrique est égal à :

$$\psi_{k0} = \frac{\pi}{4}. \quad (158)$$

La résonance du mode k se produit lorsque la fréquence du signal électrique est égale à la moitié de la fréquence de résonance propre de la goutte soit :

$$f_{k0} = \frac{\omega_{k0}}{2\pi} = \frac{1}{2} \left(\frac{\xi_{k0}}{2\pi} \right). \quad (159)$$

Les expressions des différentes grandeurs intervenant dans le phénomène d'oscillations sont résumées dans le tableau suivant (Tab. 16) :

Grandeur	Expression
fréquence de résonance de la goutte	$\frac{\xi_{k0}}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\gamma \frac{(k+2)(k-1)k}{\rho R_0^3}}$
constante de temps du régime transitoire	$\tau_{\eta k} = \frac{\rho R_0^2}{2\eta(k-1)(2k+1)}$
retard de phase	$\psi_k = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{8\eta(k-1)(2k+1)R_0\omega}{4\rho R_0^3\omega^2 - \gamma(k+2)(k-1)k} \right)$
amplitude du mode k et amplitude à la résonance	$A_k = \frac{T_e k(2k+1)P_k(0)}{2\rho R_0 \sqrt{(\gamma \frac{(k+2)(k-1)k}{\rho R_0^3} - 4\omega^2)^2 + (8 \frac{\eta(k-1)(2k+1)}{\rho R_0^2} \omega)^2}}$ $A_{k0} = abs \left(\frac{kP_k(0)R_0 T_e}{8\eta(k-1)\xi_{k0}} \right)$

Tab. 16 Tableau récapitulatif des grandeurs caractérisant les oscillations de goutte.

Par ailleurs, face aux difficultés de calcul de la contrainte électrique réelle au point triple (cf partie B du chapitre 3), on prendra l'expression simplifiée suivante:

$$T_e \equiv \frac{CV_0^2}{8R_0}, \quad (160)$$

avec V_0 , l'amplitude maximale du signal électrique, R_0 , le rayon moyen et C, la capacité électrique équivalente. Il s'agit de la tension effective d'électromouillage issue de l'approche

énergétique divisée par une grandeur caractéristique que nous prendrons égale au rayon moyen.

Enfin, étant donné les valeurs des différentes constantes d'établissement du régime permanent relatives à chacun des modes $\tau_{\eta k} = \frac{1}{b_k}$ (l'application numérique donne des valeurs inférieures à 10 ms pour une goutte de PBS de 1,5 μ l dans l'air), le régime d'oscillations transitoire disparaît trop rapidement pour être étudié par une méthode de stroboscopie. Nous nous focalisons donc sur le régime d'oscillations établi. Le spectre d'oscillation du modèle linéaire est représenté sur la figure 91.

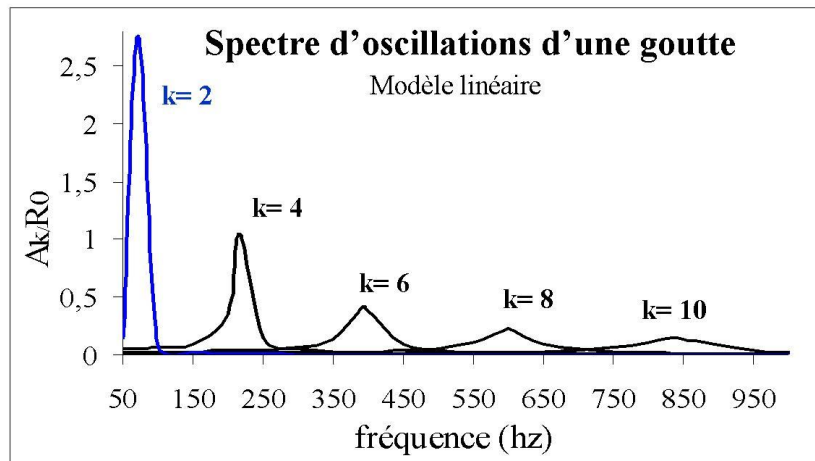


Fig. 91 Spectre d'oscillation d'une goutte de PBS dans l'air fourni par le modèle linéaire. La courbe bleue relative au mode 2 est tracée pour une amplitude de signal électrique égale à 60 V_{eff} ; pour les autres courbes, la tension est de 91,7 V_{eff} .

On observe des pics de résonance qui se succèdent au fur et à mesure que la fréquence augmente. Chacun des modes est sollicité un à un suivant des degrés d'oscillation croissants. Leur amplitude diminue avec la fréquence et d'après l'expression donnant l'amplitude maximale du mode k (Tab. 16), la décroissance des pics suit une loi proportionnelle à $k^{-\frac{3}{2}}$.

3. Etude quantitative des oscillations de goutte

Dans toutes les sections qui suivent, la fréquence évoquée dans les résultats expérimentaux et les observations correspond à la fréquence du signal électrique ($f = \omega/2\pi$) qui est le paramètre de contrôle. En incrémentant le déphasage entre le signal électrique et le stroboscope de 5°, on visualise les différentes formes prises par la goutte sur un cycle d'oscillations. Les images prises sont alors analysées avec l'outil d'analyse du logiciel Oscill-EWOD (Fig. 41). Les profils de goutte sont extraits (Fig. 92) et analysés (Fig. 93).

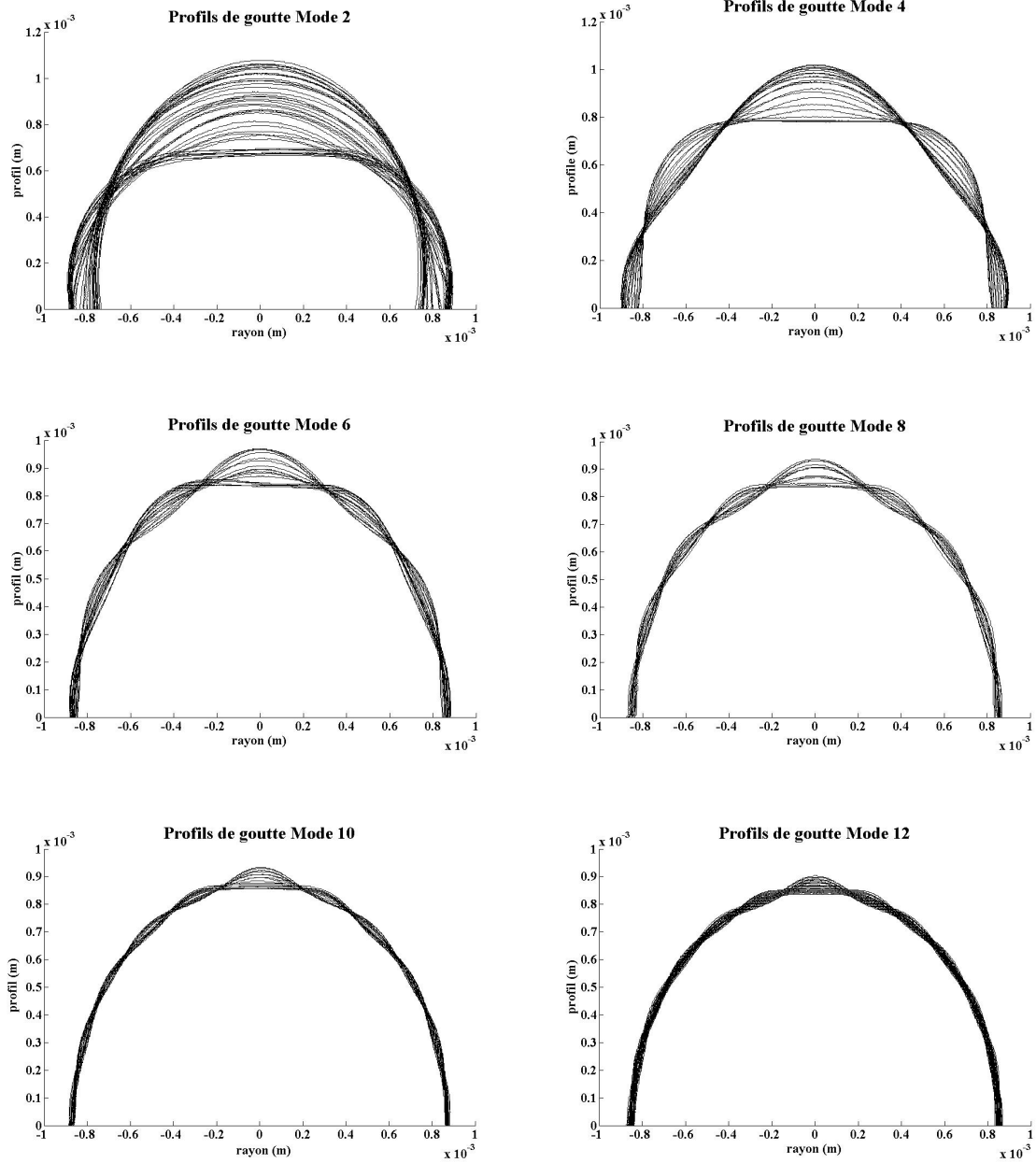


Fig. 92 Superposition des différents profils d'oscillations relatifs à chaque mode k .

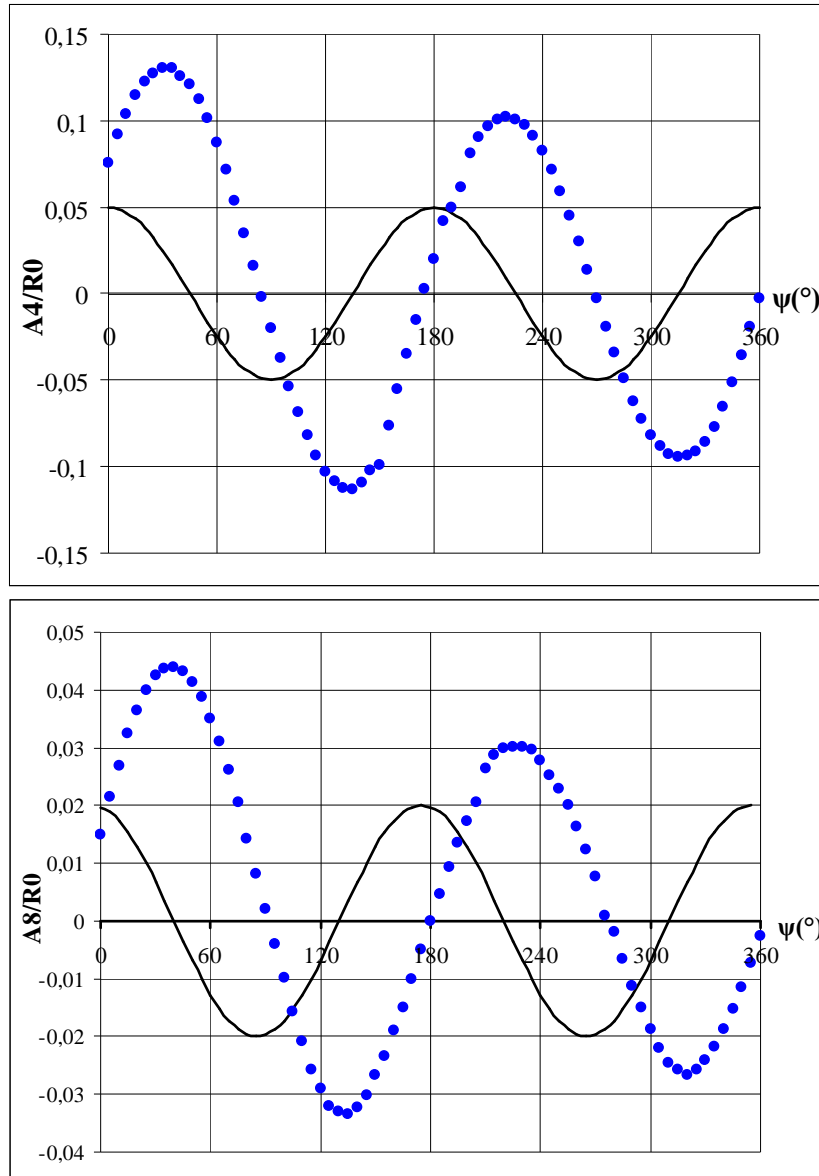


Fig. 93 Evolution de l'amplitude d'oscillation des modes 4 et 8 à leur fréquence de résonance sur une période du signal électrique. La courbe noire (qui n'est pas à l'échelle) permet d'indiquer l'évolution temporelle de la contrainte électrique sur une période du signal imposé.

On note que les modes d'oscillations observés sont tous de degré pair. Ceci s'explique par l'équation (146) : le terme forçant fait intervenir des polynômes de Legendre évalués en 0. Or les polynômes de Legendre de degré impair sont nuls en 0, et seuls les modes pairs sont alors excités, ce qui est confirmé par l'expérience.

a. Fréquence d'oscillation de la goutte

Les courbes représentées sur la figure 93 montrent l'évolution des amplitudes des modes 4 et 8 à leurs fréquences de résonance respectives (210 Hz et 600 Hz). L'axe des abscisses correspond au déphasage entre le signal électrique alimentant la puce et le signal électrique alimentant le stroboscope, les deux signaux étant réglés à la même fréquence, un déphasage de 360° correspond au balayage d'une période du signal électrique. Le terme forçant (c'est-à-dire la partie temporelle de la contrainte électrique) a une fréquence d'oscillation égale au

double de celle du signal électrique (car la contrainte est en $\cos^2(\omega t)$). Ces courbes permettent de vérifier que la goutte oscille à la même fréquence que le terme forçant, soit deux fois la fréquence du signal électrique.

On observe également que les oscillations sont de type sinusoïdal même si l'on observe une diminution progressive des amplitudes avec le déphasage en fin d'expérience. Cette diminution est liée à l'évaporation de la goutte, les expériences durant près de 4 minutes (Fig. 36). L'évaporation agit doublement sur la diminution des amplitudes d'oscillation :

Lorsque le rayon de la goutte diminue, le spectre de résonance glisse (équation (142) et Fig. 96). Le passage d'un spectre d'oscillation à un autre se traduit dans ce cas par une diminution de l'amplitude des oscillations.

A cela s'ajoute le fait que l'amplitude des oscillations diminue lorsque le volume de la goutte diminue (cf. expression donnée dans le tableau 16).

Ce double effet explique ainsi la diminution progressive des amplitudes d'oscillations au cours de l'expérience. L'utilisation d'une caméra rapide aurait permis de s'affranchir de ce phénomène d'évaporation.

Par ailleurs on peut lire que les oscillations sont en retard par rapport au terme forçant et que ce retard de phase est relativement proche des 45° prédit par le modèle analytique.

Ces courbes permettent donc de confirmer que la goutte est en régime d'oscillations forcées et qu'elle adopte ainsi le même type (sinusoïdal) et la même fréquence d'oscillations (2ω) que la partie temporelle de la contrainte d'électromouillage.

b. Fréquences de résonance des modes

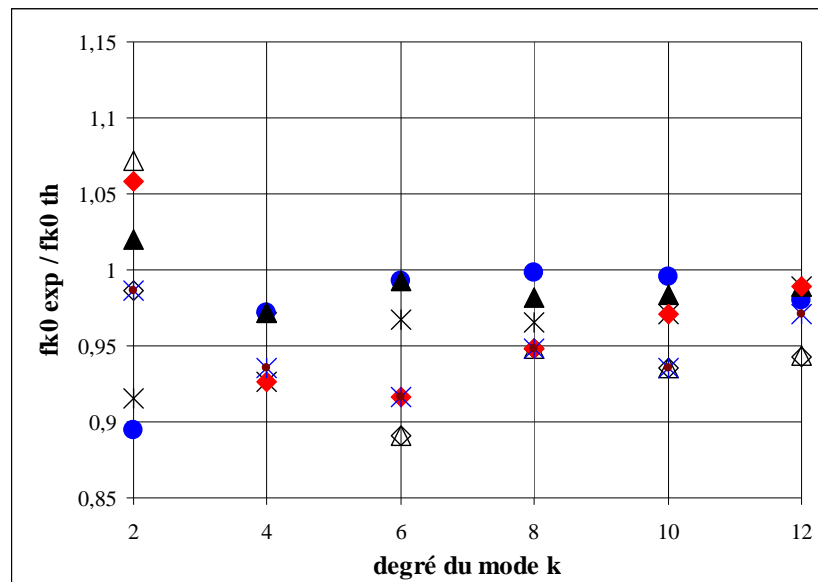


Fig. 94 Rapport des fréquences de résonance expérimentale et théorique d'une goutte de PBS de volume $1,5 \mu\text{l}$ dans l'air tel que mesuré sur plusieurs expériences d'oscillations.

Les valeurs représentées sur la figure 94 indiquent le rapport entre la fréquence de résonance expérimentale et la fréquence de résonance théorique pour différentes expériences. On

observe que les valeurs expérimentales sont en moyenne inférieures aux valeurs théoriques. Une observation similaire est faite par Oh *et al.* (2008) et les auteurs évoquent un possible effet non linéaire d'interaction entre les différents modes [Trinh, Zwern et al. 1982]. De plus, on remarque que d'une expérience à l'autre des écarts de valeur peuvent intervenir. Des phénomènes qui ne sont pas totalement maîtrisés tels que l'évaporation ou encore l'état de surface de la puce et auxquels les oscillations sont très sensibles pourraient expliquer ces écarts. Néanmoins, les fréquences de résonance relevées restent dans une fourchette d'erreur inférieure à 10%, ce qui, compte tenu de l'hypothèse faite de sphère liquide, reste acceptable.

Par ailleurs, on note que l'amplitude du signal électrique n'a que très peu d'influence sur les valeurs de fréquence de résonance (Fig. 95) ce qui était prévisible au vue de l'expression (142).

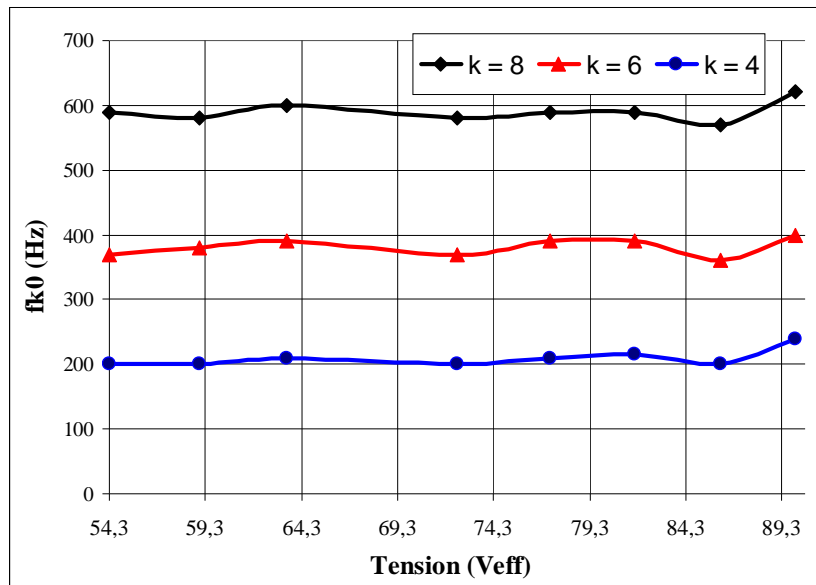


Fig. 95 Fréquence de résonance d'une goutte de 1,5 µl en fonction de l'amplitude du signal électrique.

Enfin, nous avons évoqué plus haut (Fig. 93) le rôle de l'évaporation sur le phénomène d'oscillation. Les courbes représentées sur la figure 96 montrent que le volume de la goutte modifie effectivement la fréquence de résonance des modes. On observe ainsi que les fréquences de résonance sont plus élevées lorsque la goutte est plus petite.

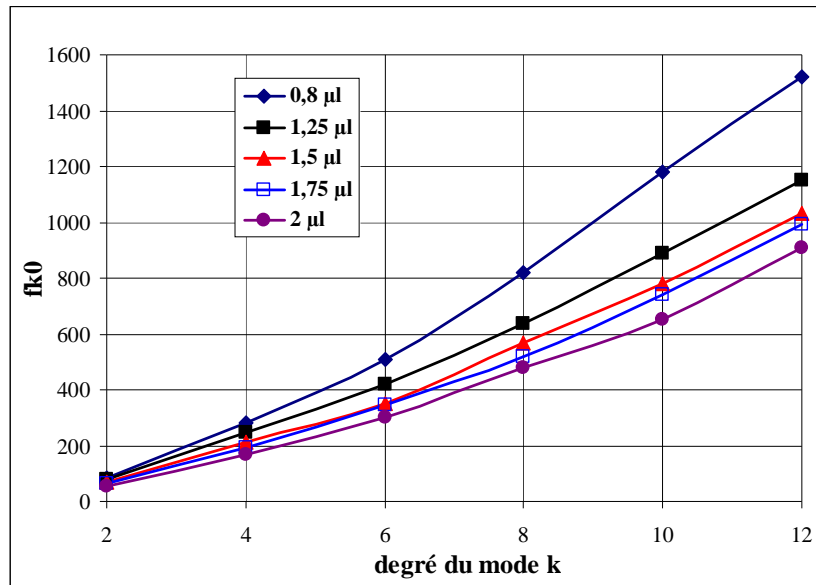


Fig. 96 Fréquence de résonance relative à chacun de modes pour différents volumes de goutte.

En résumé, le modèle théorique permet de retrouver la fréquence d'oscillations de la goutte et de déterminer ses fréquences de résonance avec une précision très acceptable. Voyons ce qu'il est en des amplitudes d'oscillations.

c. Amplitudes d'oscillations

Les observations avaient révélé que l'amplitude des oscillations diminuait lorsque leur mode augmentait. La mesure des positions extrêmes de l'apex de la goutte et de la ligne de contact permet de donner un premier diagnostic quantitatif. Les valeurs sont résumées dans le tableau 17.

Mode	Apex (μm)	TCL (μm)
2	413,3	168,1
4	237,5	71,6
6	136,6	35,3
8	100,8	34,8
10	78	30,2
12	68,3	20,9

Tab. 17 Amplitude d'oscillation de l'apex de la goutte et de la ligne de contact (TCL).

Ainsi, à la résonance du mode 4 (216 Hz), le déplacement de l'apex de la goutte est de 237 μm tandis qu'au mode 12 (1093 Hz), il n'est plus que de 68 μm . Concernant la ligne de contact (TCL), son déplacement passe de 72 μm à 20 μm pour des fréquences de 216 Hz et 1093 Hz, respectivement. On observe alors une diminution progressive de l'amplitude des modes au fur et à mesure que le degré du mode augmente.

Une seconde méthode de mesure des oscillations consiste à décomposer le profil de la goutte en polynômes de Legendre et d'identifier l'amplitude relative à chacun des modes oscillants. En traçant les résultats de l'analyse en fonction de la fréquence du signal électrique, on obtient alors le spectre d'oscillation de la goutte (Fig. 97).

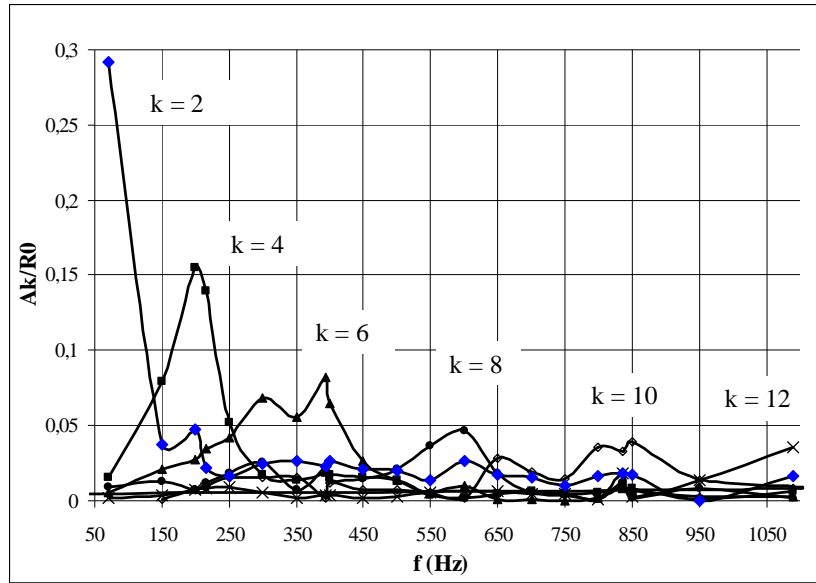


Fig. 97 Spectre d'oscillation d'une goutte de PBS de 1,5µl réalisé à partir de l'expérience. La courbe du mode 2 (marqueurs bleus) est réalisée avec une tension de 60 V_{eff} alors que pour les autres courbes V = 91,7 V_{eff}.

La remarque faite préalablement sur la répétabilité des fréquences de résonance vaut également pour la mesure des amplitudes d'oscillations ; ainsi, d'une expérience à l'autre, l'amplitude des pics de résonance peut varier de 10 à 15 %. L'allure générale du spectre expérimental est néanmoins semblable à celle du spectre théorique (Fig. 91) montrant des pics de résonance organisés sous forme de cascade. Néanmoins, on observe qu'à la résonance, le mode k domine mais que les autres modes ne sont pas nuls contrairement à ce que prédit le modèle ; le profil de la goutte à la résonance est donc la combinaison d'un mode dominant et de différents modes secondaires. Dans la théorie linéaire, ceci ne peut se produire car chaque mode est sollicité de manière indépendante. Une autre limite du modèle concerne les amplitudes des modes à la résonance. Les modes théoriques sont ainsi 3 à 10 fois plus amplifiés que les modes observés expérimentalement. La surestimation des amplitudes d'oscillations théoriques est typique des modèles linéaires pour peu que le terme de dissipation visqueuse soit faible. En effet, en reprenant l'expression (157) et en considérant une (petite) incertitude d'ordre ε sur l'écriture des termes forçant et dissipatif, on a :

$$F_k = \varepsilon F_{k0}, \quad (161)$$

$$b_k = \varepsilon b_{k0}, \quad (162)$$

avec :

$$e \ll 1, F_{k0} = O(1) \text{ et } b_{k0} = O(1). \quad (163)$$

On trouve alors que la réponse du système à la résonance est d'ordre 1 :

$$A_{k0} = \frac{F_{k0}}{2b_{k0}\xi_{k0}} = O(1), \quad (164)$$

montrant ainsi que le modèle d'oscillations linéaire amplifie la réponse à la résonance de manière disproportionnée. Cette limite du modèle est soulignée par Prosperetti (1974) et une meilleure estimation des amplitudes à la résonance nécessiterait un modèle non-linéaire plus complet prenant en compte le frottement de la ligne de contact sur la surface de la puce ainsi

que les effets d'hystérésis [Oh, Ko et al. 2010]. Il serait inexact de penser que le frottement visqueux de la ligne de contact est négligeable en raison de la lubrification de la surface de la puce. Au contraire, le film d'huile en limitant le piégeage de la ligne de contact favorise son déplacement. Or le frottement visqueux est inhérent au mouvement de la ligne de contact [Huh and Scriven 1971].

Malgré un écart d'amplitude important à la résonance, l'expérience semble vérifier la loi d'échelle en $k^{-\frac{3}{2}}$ donnée par le modèle (équation (157)) de manière assez satisfaisante.

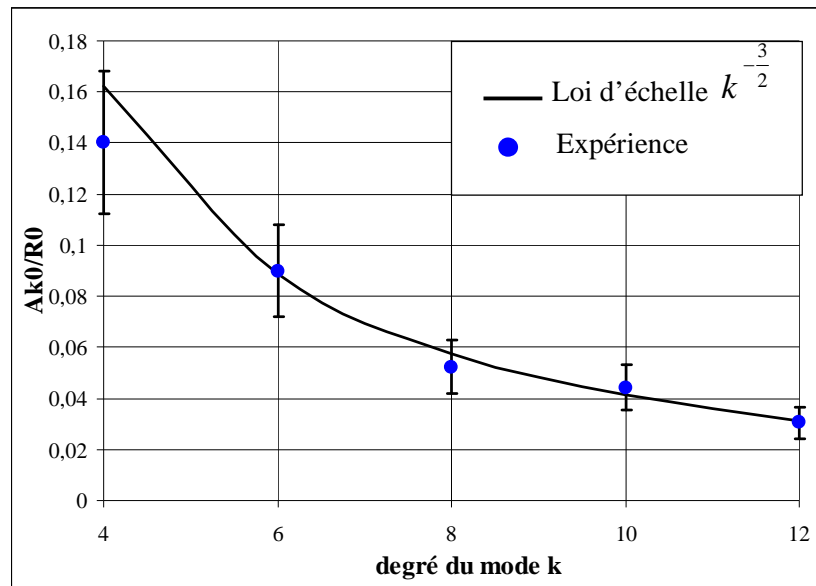


Fig. 98 Amplitudes des modes résonants en fonction du degré d'oscillation. Le mode 2 est exclu car l'amplitude du terme est différente de celles des autres points.

En diminuant l'amplitude du signal électrique de $91,7 V_{\text{eff}}$ à $72 V_{\text{eff}}$, on observe clairement une atténuation des oscillations de la goutte. Ceci est particulièrement visible aux fréquences de résonance. A noter que dans le modèle linéaire, la goutte oscille quelle que soit l'amplitude du terme forçant. Dans l'expérience néanmoins, il faut d'abord vaincre l'hystérésis de l'angle de mouillage avant de voir apparaître les premières oscillations, cela se produit dès $65 V_{\text{eff}}$ environ pour les modes de degré supérieur à 4. Les courbes représentées sur la figure 99 montrent l'évolution des amplitudes des modes à la résonance en fonction de la tension électrique.

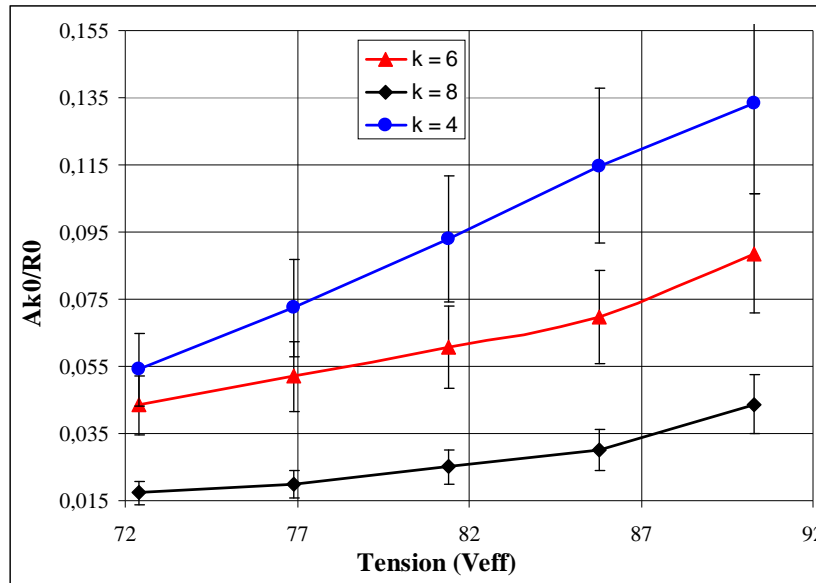


Fig. 99 Evolution de l'amplitude des modes en fonction de la tension électrique.

Le mode 2 est traité à part en raison de sa fréquence de résonance (70 Hz) pour laquelle le gain d'amplification est fortement atténué (à la résonance du mode 2, l'amplitude maximale du signal électrique est de 60 V_{eff} contre 91,7V_{eff} pour les autres modes). Les observations sont néanmoins identiques à celles des autres modes : plus l'amplitude du signal électrique est grande et plus les oscillations sont grandes. Le graphe de la figure 100 comporte deux axes verticaux adaptés aux échelles des courbes théoriques (en noir) et expérimentales (en bleu) et l'on peut voir que le modèle linéaire surestime d'un facteur 10 environ l'amplitude à la résonance mais que l'allure linéaire des courbes est néanmoins similaire.

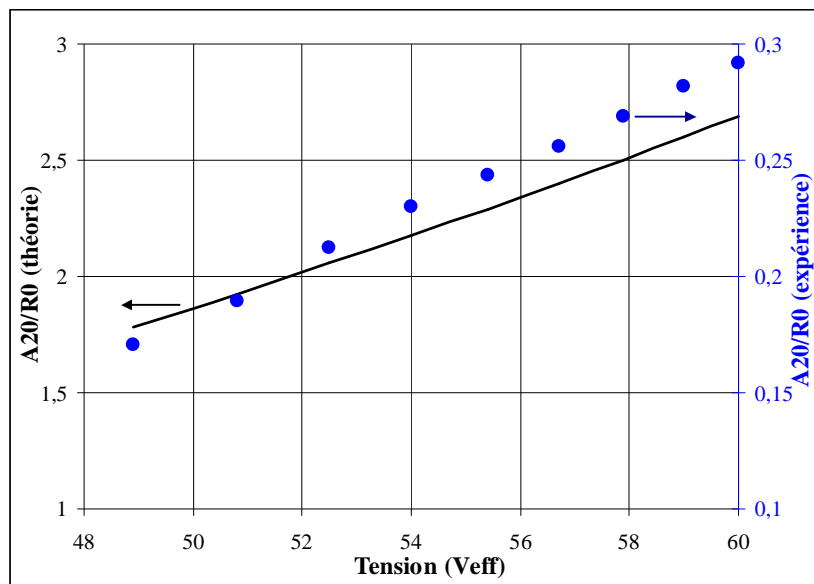


Fig. 100 Amplitude théorique et amplitude expérimentale du mode 2 en fonction de la tension électrique.

Conclusion de la partie A :

Ainsi, nous avons vu que les modèles issus de la littérature permettent de caractériser le phénomène d'oscillations de manière satisfaisante en ce qui concerne la détermination des fréquences de résonance et de manière disproportionnée en ce qui concerne les amplitudes d'oscillation. L'approche linéaire permet néanmoins de prédire correctement certains résultats tels que les lois d'évolution.

La définition des conditions expérimentales comme l'utilisation du film d'huile a permis d'améliorer considérablement la reproductibilité des expériences et de déterminer une gamme de fréquence dans laquelle des oscillations axisymétriques de fortes amplitudes sont visibles sur des gouttes de $1,5\mu\text{l}$. Le caractère axisymétrique des oscillations a pu être vérifié dans notre configuration d'électrodes coplanaires confirmant les observations faites par Oh *et al.* (2008) en configuration à électrode plongeante. Par rapport à l'étude existante, les expériences ont pu être approfondies grâce au logiciel *Oscill-EWOD*. Celui-ci a par exemple permis de dresser un spectre d'oscillation à partir des expériences et d'étudier l'influence de la tension électrique sur les amplitudes d'oscillation. En particulier, on note qu'à la résonance, la goutte oscille avec un mode dominant et des modes secondaires, ce qui n'est pas prévu par le modèle linéaire. Le phénomène d'oscillations étant dorénavant compris de manière suffisamment quantitative, voyons comment il peut induire des écoulements au sein de la goutte. En raison des modes d'oscillations, on doit s'attendre à des écoulements très fortement dépendants de la fréquence du signal électrique.

Partie B : Courant de dérive induit dans les gouttes

1. Observations préliminaires

a. Rappel du protocole

On ajoute maintenant au dispositif le module laser et les lentilles cylindriques permettant de réaliser la nappe laser et de visualiser l'écoulement sur une tranche. La binoculaire (*Zeiss Axioplan 2*) est placée au dessus de la goutte afin de visualiser également l'écoulement en vue de dessus. La goutte de PBS dont le volume est de $1,25\mu\text{l}$ est déposée sur la puce et est activée par électromouillage. Un volume de $0,25\mu\text{l}$ de la solution contenant les billes est alors introduit dans la goutte. On éclaire celle-ci avec la nappe laser et on suit l'évolution des traceurs en fonction du potentiel électrique et des modes d'oscillations. Si l'on place de plus la diode derrière la goutte, on peut alors visualiser simultanément l'écoulement et les oscillations.

Toutes les images et courbes de cette partie sont réalisées avec la configuration représentée sur la figure 47 : l'espace inter-électrodes est de $3\mu\text{m}$, la vue de profil se fait suivant la direction de l'espace inter-électrodes et pour la vue de dessus, l'espace inter-électrodes est toujours orienté suivant la direction horizontale.

b. Mise en évidence d'un lien entre écoulement et oscillations de goutte

L'application du potentiel électrique montre l'existence d'écoulements au sein de la goutte sur une plage fréquentielle allant de quelques dizaines de Hertz à environ 10 kHz. Le domaine d'observation des écoulements coïncide donc parfaitement avec celui des oscillations. On rappelle de plus qu'en signal électrique continu, la goutte s'étale mais ni les oscillations ni les écoulements ne se produisent. Enfin, les structures d'écoulement varient en fonction de la fréquence du signal électrique. Ainsi, les observations montrent un couplage très fort entre les phénomènes d'oscillations et d'écoulements. On remarque qu'en regardant les écoulements de dessus, il est difficile d'en déduire que la goutte oscille. Ceci explique que les premières expériences n'aient pas révélé la présence d'oscillations alors que le phénomène d'écoulement était bien visualisé. La suite de cette partie se concentre sur le couplage entre les oscillations et les écoulements.

2. Ecoulement hydrodynamique induit par un phénomène oscillatoire

a. Le courant de dérive (steady streaming)

La création d'un écoulement hydrodynamique non nul en moyenne à partir d'un phénomène oscillant périodiquement n'est pas intuitive. Elle résulte d'effets non-linéaires associés aux

termes inertiels de l'équation de Navier Stokes et porte le nom générique de *steady streaming*. Le *steady streaming* est un phénomène qui est observé dans de nombreux domaines : en hydraulique, il est impliqué dans le processus de transport de sédiments par les vagues [Huang 1970]. En physiologie, le *steady streaming* intervient dans le processus de transformation du signal sonore en signal neuronal par l'intermédiaire du liquide contenu dans la cochlée [Lighthill 1991; Lighthill 1992]. On le retrouve également dans certains modèles de recirculation sanguine [Jayaraman and Sarkar 2005].

Concernant les applications en microfluidique, le *steady streaming* est un des rares phénomènes pour lesquels les effets inertiels tiennent une place prépondérante. Il est très souvent généré par l'utilisation d'ondes acoustiques et est rebaptisé dans ce cas spécifique *acoustic streaming*. Celui-ci peut être exploité afin de pomper un liquide [Marmottant and Hilgenfeldt 2004], ou de capturer des espèces chimiques en solution [Lutz, Chen et al. 2003] ou encore de favoriser le mélange dans des micro chambres [Liu, Yang et al. 2002].

Les premières observations sur le *steady streaming* ont été réalisées par Faraday (1831) et concernent l'écoulement produit par un plateau en vibration. Il faut néanmoins attendre 1884 [Rayleigh 1884] pour que les premiers travaux théoriques apparaissent. Ils concernent l'écoulement induit entre deux plans par des ondes acoustiques. L'écoulement stationnaire qui s'y produit résulte alors de la dissipation de l'énergie acoustique dans la couche limite de Stokes. Ce cas de figure diffère du *quartz wind* (ou *Eckart streaming*) pour lequel l'écoulement est généré par la dissipation volumique de l'énergie acoustique sous l'effet de la compressibilité du fluide. L'étude du *steady streaming* se poursuit dans les années 1930 avec les travaux de Carrière (1929), Andrade (1931) et Schlichting (1932) sur des obstacles solides soumis à des écoulements périodiques. Leurs observations sont contradictoires en raison de paramètres expérimentaux qui diffèrent et ce n'est que par la suite, avec les travaux de Stuart [Stuart 1963; Stuart 1966] et Riley (1965) que les paramètres pertinents du *steady streaming* sont identifiés, permettant de prévoir différents types d'écoulements.

b. Mise en équation du *steady streaming*

On considère un domaine fluide incompressible de dimension a pour lequel on impose sur une frontière une condition limite de vitesse oscillante de pulsation ω et de forme :

$$u_{\infty}(x, t) = \text{Re}(u_{\infty}^*) = \text{Re}(U_{\infty}^* e^{i\omega t}) = \text{Re}(U_{\infty} e^{i\psi} e^{i\omega t}), \quad (165)$$

où l'étoile * désigne la notation complexe, $\text{Re}(\cdot)$ désigne la partie réelle et ψ la phase. L'équation de Navier Stokes régissant la dynamique du liquide s'écrit :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \eta \Delta \mathbf{u}, \quad (166)$$

où p est la pression corrigé par le terme de gravité. Elle se réécrit sous forme adimensionnelle en considérant d , ω^{-1} , et U_{∞} comme étant les échelles caractéristiques de longueur, de temps et de vitesse respectivement :

$$S \frac{\partial \hat{\mathbf{u}}}{\partial t} + (\hat{\mathbf{u}} \cdot \nabla) \hat{\mathbf{u}} = -\nabla \hat{p} + \frac{1}{\text{Re}_d} \Delta \hat{\mathbf{u}}, \quad (167)$$

où \hat{u} est la vitesse adimensionnelle $\hat{\mathbf{u}} = \frac{\mathbf{u}}{U_\infty}$, \hat{p} la pression adimensionnelle $\hat{p} = \frac{p}{\rho U_\infty^2}$, et où les nombres adimensionnels de Strouhal S et de Reynolds Re_d sont définis par :

$$S = \frac{\omega a}{U_\infty} ; Re_d = \frac{\rho U_\infty d}{\eta}. \quad (168)$$

L'écoulement étant incompressible, on peut introduire le potentiel vecteur de vitesse $\hat{\Psi}(0,0,\hat{\Psi})$ qui, pour un écoulement bidimensionnel, ne comporte qu'une composante non nulle orientée suivant la normale au plan.

La vitesse s'écrit alors :

$$\hat{\mathbf{u}} = \nabla \times \hat{\Psi}. \quad (169)$$

On peut donc écrire l'équation de la vorticit , $\hat{\Omega} = \nabla \times \hat{\mathbf{u}} = -\nabla^2 \hat{\Psi}$, obtenue en prenant le rotationnel de l' quation (167), en fonction de la seule grandeur $\hat{\Psi}$:

$$\frac{\partial}{\partial t} (\nabla^2 \hat{\Psi}) - \varepsilon \left(\frac{\partial \hat{\Psi}}{\partial x} \frac{\partial \nabla^2 \hat{\Psi}}{\partial y} - \frac{\partial \hat{\Psi}}{\partial y} \frac{\partial \nabla^2 \hat{\Psi}}{\partial x} \right) = \frac{\varepsilon^2}{R_s} \nabla^4 \hat{\Psi}, \quad (170)$$

où les param tres adimensionnels ε et R_s sont d finis par :

$$\varepsilon = \frac{U_\infty}{\omega d} ; R_s = \frac{\rho U_\infty^2}{\omega \eta}. \quad (171)$$

On remarque que dans le cas où $\varepsilon = 0$, l' quation (170) est lin aire et la solution est proportionnelle   $\cos(\omega t)$. Au contraire, dans le cas où $\varepsilon \neq 0$, l' quation devient non lin aire et la solution comporte alors des termes proportionnels   $\cos^2(\omega t) = \frac{1}{2}(1 + \cos 2(\omega t))$. Le courant de d rive repr sente la partie stationnaire de l' quation (170) qui appara t lorsque le terme non lin aire est non n gligeable. La non-lin arit  de cette  quation rend sa r solution particuli rement complexe. N anmoins, dans le cas où $\varepsilon \ll 1$, Schlichting a apport  une solution en utilisant une m thode de perturbations dans laquelle il  crit la solution g n rale sous la forme [Schlichting 1979] :

$$\hat{\Psi} = \hat{\Psi}_0(t) + \varepsilon \hat{\Psi}_1(t) + O(\varepsilon^2), \quad (172)$$

où $\hat{\Psi}_0$ est la solution de l' quation lin aire obtenue en posant $\varepsilon = 0$ dans l' quation (170).

Le terme $\hat{\Psi}_1$ est ensuite d compos  en une partie d pendante du temps $\hat{\Psi}_1^u(t)$ et une partie stationnaire $\hat{\Psi}_1^s$ repr sant le courant de d rive :

$$\hat{\Psi}_1 = \hat{\Psi}_1^s + \hat{\Psi}_1^u(t). \quad (173)$$

En injectant les expressions (172) et (173) dans l' quation (170), on obtient un syst me d' quations dont la r solution se trouve dans [Riley 1967].

On montre que la solution comporte un terme instationnaire confiné dans une couche limite de type Stokes d'épaisseur $\delta_s = \sqrt{\frac{\eta}{\rho\omega}}$ dans laquelle la vorticit  moyenne sur une p riode est nulle tandis qu'au del  de la couche de Stokes, une vitesse de d rive stationnaire appara t et son expression,  gale  ,

$$U_s = \frac{3}{8\omega} \left(-\frac{d(U_\infty^* \text{conj}(U_\infty^*))}{dx} + i(\text{conj}(U_\infty^*)) \frac{dU_\infty^*}{dx} - U_\infty^* \frac{d(\text{conj}(U_\infty^*))}{dx} \right), \quad (174)$$

qui se r crit compte tenu de l'expression (165) :

$$U_s = -\frac{3}{8\omega} \left(\frac{dU_\infty^2}{dx} + 2U_\infty^2 \frac{d\psi}{dx} \right). \quad (175)$$

Le premier terme du membre de droite correspond au cas o  la vitesse oscillante est du type « onde stationnaire », tandis que le second terme correspond   une onde de « type progressive ». Une expression identique de la vitesse de d rive ( quation (175)) se trouve dans [Batchelor 1967]. Pour des oscillations de type stationnaire, l'expression de la vitesse de d rive est donc :

$$U_s = -\frac{3}{8\omega} \frac{dU_\infty^2}{dx} = -\frac{3}{4\omega} U_\infty \frac{dU_\infty}{dx}. \quad (176)$$

Cette vitesse de d rive provoque un  coulement net et stationnaire qui persiste au del  de la couche de Stokes, dans le volume fluide. Le type d' coulement en volume d pend alors de la valeur du param tre R_s :

Pour $R_s \ll 1$, l' coulement induit dans le volume fluide par la vitesse de d rive est du type  coulement de Stokes.

Pour $R_s \gg 1$, Stuart (1966) a montr  que l' coulement persiste en dehors de la couche de Stokes sur une (fine) couche d' paisseur $\delta = O(\varepsilon^{-1} \sqrt{\frac{\eta}{\rho\omega}})$.

Il est int ressant de noter que le type d' coulement en volume induit par le *steady streaming* n'est plus directement li  au nombre de Reynolds Re_d . Au contraire, le param tre pertinent pour d terminer la configuration d' coulement en volume est le nombre adimensionnel $R_s = \frac{\rho U_\infty^2}{\omega\eta}$.

Les travaux sur le courant de d rive permettent de comprendre comment un ph nom ne p riodique peut solliciter le terme non lin aire de l' quation de Navier-Stokes et ainsi provoquer un  coulement stationnaire. La suite concerne l'application directe de ce principe dans le cadre des oscillations de goutte induites par un r gime d' lectromouillage oscillatoire.

c. Mod le d' coulement induit par les oscillations en goutte

Dans le cas o  la goutte oscille   la pulsation ξ_k du mode k (avec $\xi_k = 2\omega_k$, ω  tant la pulsation du signal  lectrique) son profil est donn  par l' quation :

$$r = R_0 + A_k \sin(\xi_k t + \psi_k) P_k(\cos(\theta)). \quad (177)$$

La vitesse d'oscillation associée au mouvement oscillatoire de la goutte est calculée à partir du potentiel des vitesses exprimé à l'intérieur de la goutte :

$$\Phi = -\frac{A_k \xi_k R_0}{k} \frac{r^k}{R_0^k} P_k(\cos(\theta)) \cos(\xi_k t + \psi_k). \quad (178)$$

La vitesse surfacique imposée par les oscillations correspond à la dérivée spatiale du potentiel des vitesses et est donnée par l'équation :

$$u_k^\infty = -\frac{1}{R_0} \frac{\partial \Phi}{\partial \theta} \Big|_{r=R_0}. \quad (179)$$

$$u_k^\infty = \frac{A_k \xi_k}{k} \frac{\partial P_k(\cos(\theta))}{\partial \theta} \cos(\xi_k t + \psi_k). \quad (180)$$

On constate qu'il s'agit d'une onde stationnaire dont l'amplitude est :

$$U_k^\infty = \frac{A_k \xi_k}{k} \frac{\partial P_k(\cos(\theta))}{\partial \theta}. \quad (181)$$

Le courant de dérive à la surface de la couche de Stokes s'écrit alors (équation (175)) :

$$U_k^s = -\frac{3}{4R_0 \xi_k} U_k^\infty \frac{dU_k^\infty}{d\theta} = -\frac{3A_k^2 \xi_k}{8R_0 k^2} \frac{d}{d\theta} (P_k'(\cos\theta))^2, \quad (182)$$

où :

$$P_k'(\cos\theta) = \frac{dP_k(\cos(\theta))}{d\theta}. \quad (183)$$

Par ailleurs, $U_k^\infty = O(A_k \xi_k)$ et on a vu dans la partie précédente que la goutte oscille à une fréquence égale au double de la fréquence imposée par le signal électrique soit : $\xi_k = 2\omega_k$. Les valeurs des différents paramètres sont estimées dans le tableau 18 :

f signal	f goutte	A_kR₀	$\delta_s = \sqrt{\frac{\eta}{\rho \xi}}$	$\varepsilon = \frac{U_\infty}{\xi d}$	$R_s = \frac{\rho U_\infty^2}{\xi \eta}$
$f = \frac{\omega}{2\pi}$	$f_g = \frac{\xi}{2\pi} = 2f$				
100 Hz	200 Hz	0,3	$\delta_s \approx 4.10^{-5}$	$\varepsilon \approx 0.3$	$R_s \approx 90$
1000 Hz	2000 Hz	0,05	$\delta_s \approx 1.10^{-5}$	$\varepsilon \approx 5.10^{-2}$	$R_s \approx 25$

Tab. 18 Tableau de valeur des paramètres du courant de dérive induit par les oscillations de goutte.

On voit que la couche de Stokes est suffisamment petite par rapport à la goutte (rayon égal à environ 10^{-3} m) pour être négligée et ne considérer que l'écoulement volumique induit par la vitesse de dérive. De plus, la théorie du courant de dérive présentée ci-dessus est valable étant donné que le paramètre ε reste petit. Enfin, la valeur du nombre R_s montre que l'écoulement en volume n'est ni de type Stokes ni de type couche limite mais qu'il se situe entre ces deux régimes asymptotiques. On a donc recours à la simulation numérique pour calculer l'écoulement induit par la vitesse de dérive dans le volume fluide.

Un modèle assez similaire a été développé par Ko *et al.* (2009) pour modéliser l'écoulement produit par une bulle d'air dans un liquide environnant. La vitesse de dérive à la surface de la

goutte est néanmoins différente de celle donnée par l'équation (182). Ceci s'explique par l'utilisation dans le modèle de Ko *et al.* du potentiel de vitesse exprimé à l'extérieur de la bulle (équation (136)). On retrouve alors un paradoxe classique de la théorie des écoulements potentiels qui est relevé dans [Prosperetti 1974] : la vitesse tangentielle de part et d'autre de la surface de la goutte ne peut pas vérifier la condition de continuité des vitesses.

3. Résolution numérique du modèle d'écoulements en goutte

Nous calculons l'écoulement hydrodynamique créé par la vitesse de *streaming* dans une goutte soumise à des oscillations axisymétriques. Nous utilisons le logiciel *Comsol Multiphysics* et plus particulièrement le module d'écoulements incompressibles. L'équation de Navier Stokes est résolue en stationnaire en considérant une géométrie 2D axisymétrique.

a. Mise en place du modèle

La géométrie de calcul est composée d'un quart de cercle de rayon égal au rayon moyen de la goutte. Les conditions de non glissement et d'axisymétrie sont imposées respectivement au niveau du substrat et de l'axe de symétrie. A la surface de la goutte, la condition de paroi glissante permet d'imposer la vitesse de dérive calculée précédemment (équation (182)). Son expression numérique pour les différents modes oscillants est saisie en tant que grandeur scalaire dans le modèle (Annexe 3). Pour chaque mode, les paramètres A_k/R_0 et ξ_k sont évalués à la résonance. Leurs valeurs sont sensiblement identiques à celles de la partie A (Fig. 96, Fig. 99 et Fig. 100), étant donné que l'ajout de billes ne modifie pas la tension de surface de la goutte de manière significative. La vitesse de dérive est alors projetée suivant le vecteur tangent au profil et décomposée dans le repère (\mathbf{r}, \mathbf{z}) . Une condition nécessaire pour que le calcul converge consiste à définir en un point une référence pour le calcul de la pression. La valeur de pression imposée ainsi que le point d'application importe peu. On impose alors la valeur $p = 0$ Pa au niveau du point triple.

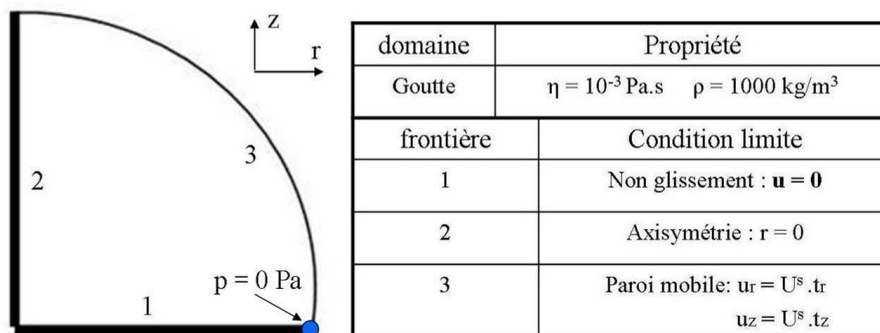


Fig. 101 Domaine de calcul et conditions limites utilisées dans le modèle numérique.

Le domaine est maillé avec des éléments triangulaires et comporte en moyenne 4200 points de calculs. Le maillage est essentiellement raffiné au voisinage de la surface libre, là où se trouve le moteur de l'écoulement. Le modèle est résolu en utilisant le solveur direct par défaut (PARDISO). Le temps de résolution est d'environ 1 minute.

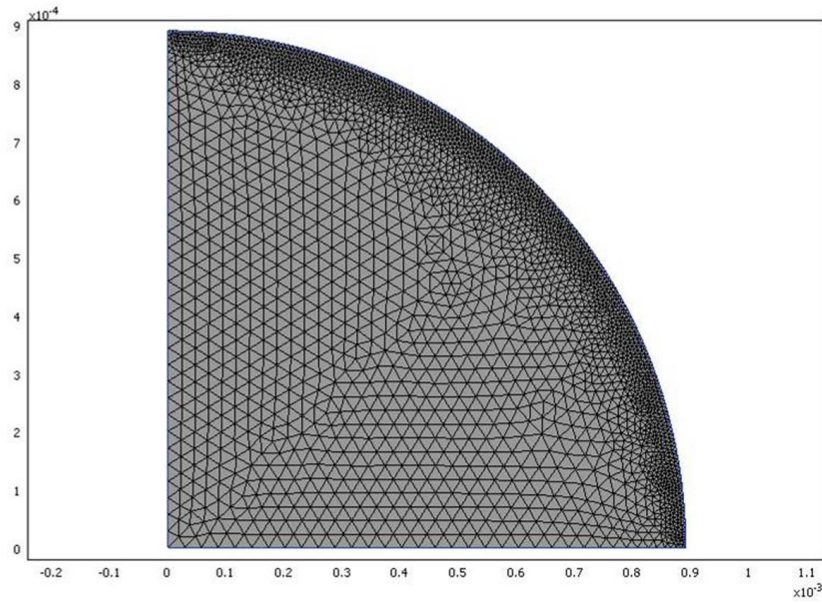


Fig. 102 Maillage du domaine de calcul par des éléments triangulaires ; le domaine comporte environ 7800 mailles et 4200 points de calcul.

b. Résultats du modèle

Les lignes de courant et champs de vitesse des différents calculs sont affichés sur la figure 103 jusqu'au mode de degré 6. Les modes de degré supérieur seront discutés par la suite.

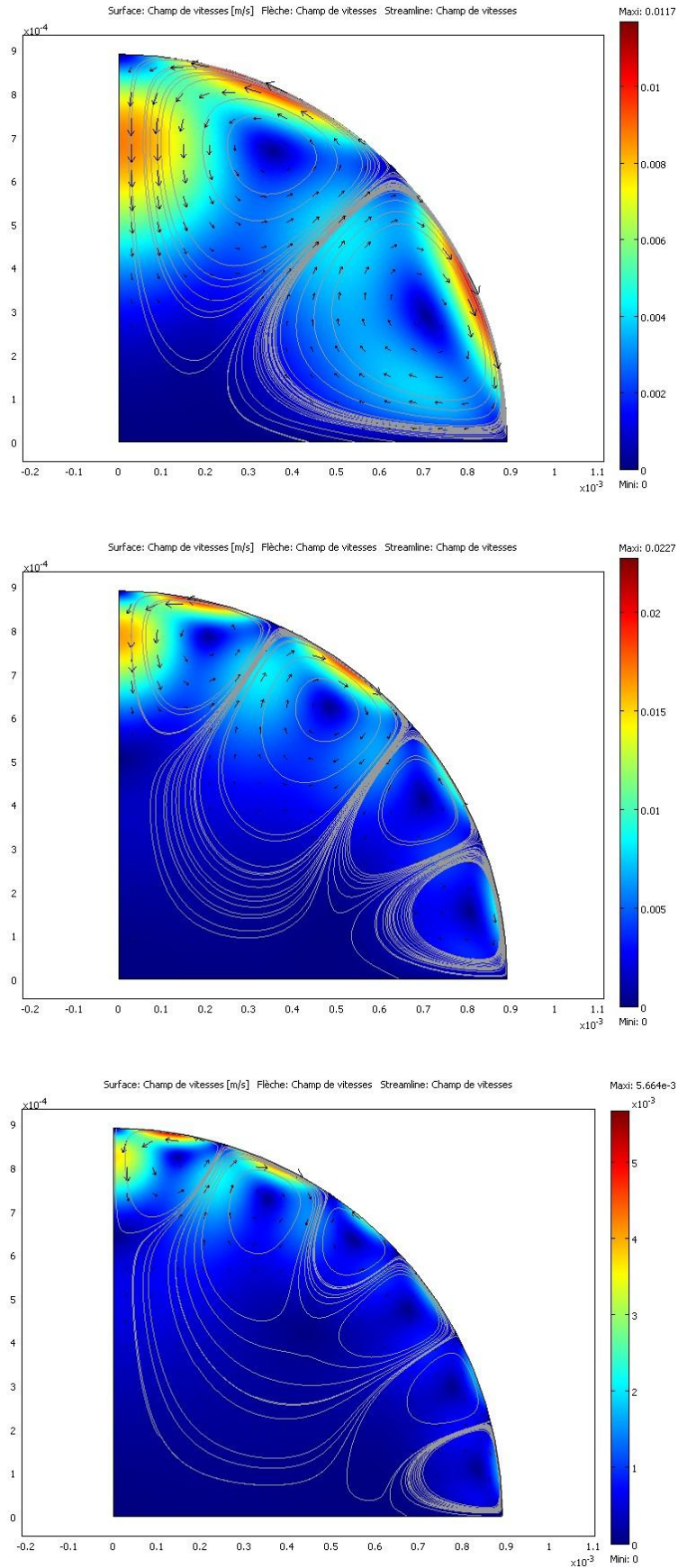


Fig. 103 Champ de vitesse (m/s) et sens d'écoulement des structures multi-tourbillonnaires correspondant aux modes 2, 4 et 6 respectivement de haut en bas.

Le calcul fait apparaître des écoulements multi-tourbillonnaires au sein des gouttes. La structure d'écoulement dépend du mode d'oscillation de la goutte. Ainsi, on observe deux grosses structures tourbillonnaires contrarotatives pour le mode 2, quatre structures pour le mode 4 puis six pour le mode 6. Le calcul étant axisymétrique, l'écoulement décrit dans le volume de la goutte correspond donc à des structures toroidales. La vitesse d'écoulement maximale se trouve à la surface de la goutte mais en volume, les vitesses les plus importantes sont localisées à l'apex de la goutte et dirigée vers le bas. Pour comprendre les configurations d'écoulement, il faut afficher la vitesse de dérive à la surface de la goutte.

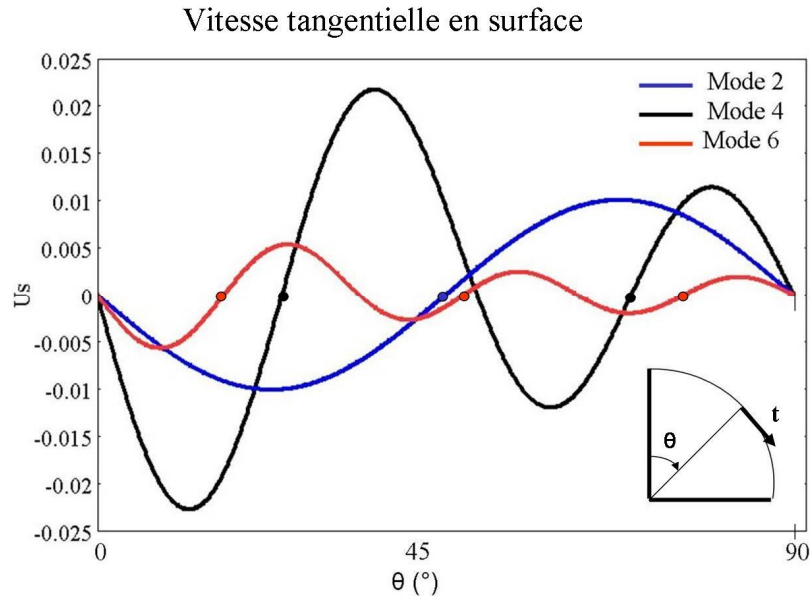


Fig. 104 Profils de vitesse (en m/s) à la surface de la goutte pour les modes 2, 4 et 6 ; les repères circulaires indiquent l'emplacement des nœuds pour chacun des modes.

La vitesse de dérive s'annule et change de signe au niveau des nœuds et ventres d'oscillations (où l'amplitude des oscillations est nulle et maximale respectivement). D'après l'expression (176), on peut déduire que cette vitesse tangentielle se dirige des nœuds vers les ventres d'oscillation, ce qui est confirmé par les courbes de la figure 104. Étant donné que les nœuds et ventres se répartissent de manière alternée à la surface de la goutte, on obtient des structures tourbillonnaires contrarotatives. Enfin, chaque nœud étant entouré de deux tourbillons, le nombre de vortex observé correspond au double du nombre de nœuds. Le mode de degré 2 comporte 1 nœud d'oscillation (sur une vue de profil de la goutte, on compte deux points (Fig. 92) mais il s'agit du même nœud compte tenu de l'axisymétrie...) et génère donc 2 tourbillons, le mode de degré 4 comporte 2 nœuds et génère 4 tourbillons et plus généralement le nombre de structures tourbillonnaires est égal au mode d'oscillation de la goutte.

L'écoulement au sein de la goutte fait apparaître des gradients de vitesse important et la vitesse moyenne des recirculations est une donnée intéressante pour estimer le brassage moyen dans la goutte. Les valeurs de vitesse moyenne calculées par la simulation numérique sont indiquées sur la figure 105.

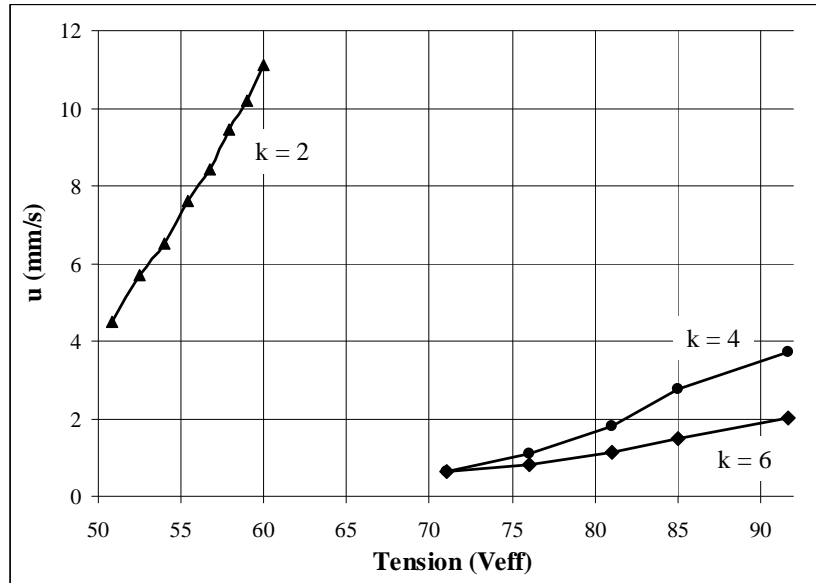


Fig. 105 Vitesse moyenne calculée numériquement dans le volume de la goutte pour différents modes d'oscillation.

On observe que les vitesses moyennes d'écoulement sont de l'ordre du mm/s, ce qui est assez important compte tenu de la taille de la goutte. De plus, plus la tension augmente et plus l'écoulement est rapide, ce qui s'explique par des amplitudes d'oscillation plus élevées (Fig. 99 et Fig. 100). Enfin, les structures d'écoulement étant plus petites en taille et localisées près de la surface de la goutte, l'écoulement moyen est plus faible lorsque le degré des modes augmente.

4. Ecoulements axisymétriques en goutte

On rappelle que dans cette partie, les fréquences indiquées correspondent aux fréquences du signal électrique f ; la fréquence d'oscillation de la goutte s'en déduit en multipliant par deux. L'écoulement hydrodynamique est mis en évidence à l'aide de traceurs (billes de polymère de $10 \mu\text{m}$ de diamètre p.76) et d'un éclairage adapté (tranche laser ou fluorescence, p.73)

a. Visualisation de dessus et axisymétrie

L'écoulement vu de dessus (Fig. 106) fait apparaître des structures difficiles à caractériser avec cette direction d'observation. Néanmoins, on peut vérifier que l'écoulement ne se fait pas suivant une direction particulière mais qu'il s'agit bien de configurations d'écoulements axisymétriques. L'observation de ces structures ne peut se faire qu'à l'aide d'une nappe laser dans un plan méridien.

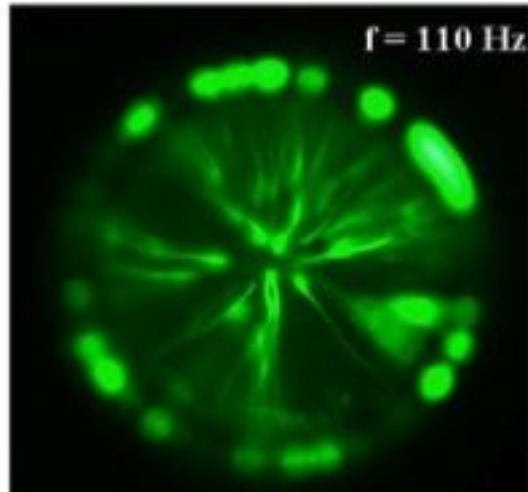


Fig. 106 Ecoulements hydrodynamiques observés de dessus sur le motif à électrodes hémicirculaires.

b. Visualisation à l'aide d'une tranche laser

La visualisation de l'écoulement avec la nappe laser permet de mettre en évidence des structures tourbillonnaires volumiques. Celles-ci sont représentées sur la figure 107 en parallèle avec les structures d'écoulement calculées pour les modes 2, 4 et 6.

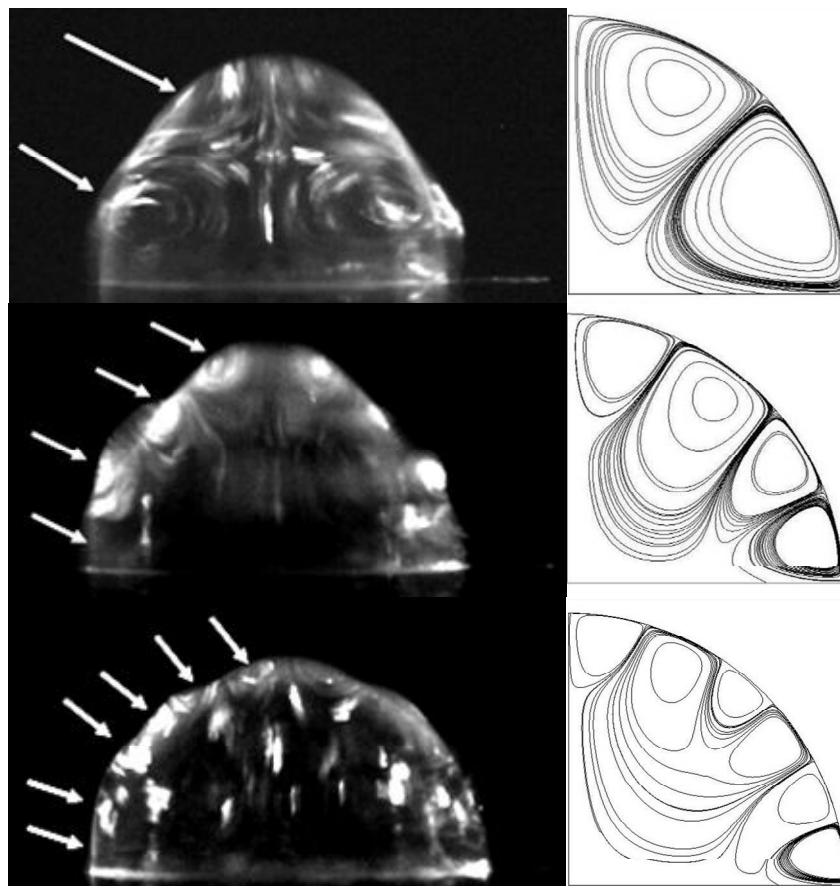


Fig. 107 A gauche : structures d'écoulements axisymétriques visualisées sur une tranche laser pour les modes 2, 4 et 6, les flèches indiquent la position des tourbillons ; à droite, calculs numériques des structures d'écoulement.

On observe que la structure d'écoulement multi-tourbillonnaire est très proche de celle calculée par le modèle numérique. En éclairant simultanément avec la nappe laser et l'éclairage stroboscopique, on observe très clairement la correspondance entre les structures tourbillonnaires et les modes d'oscillations de la goutte (Fig. 108).

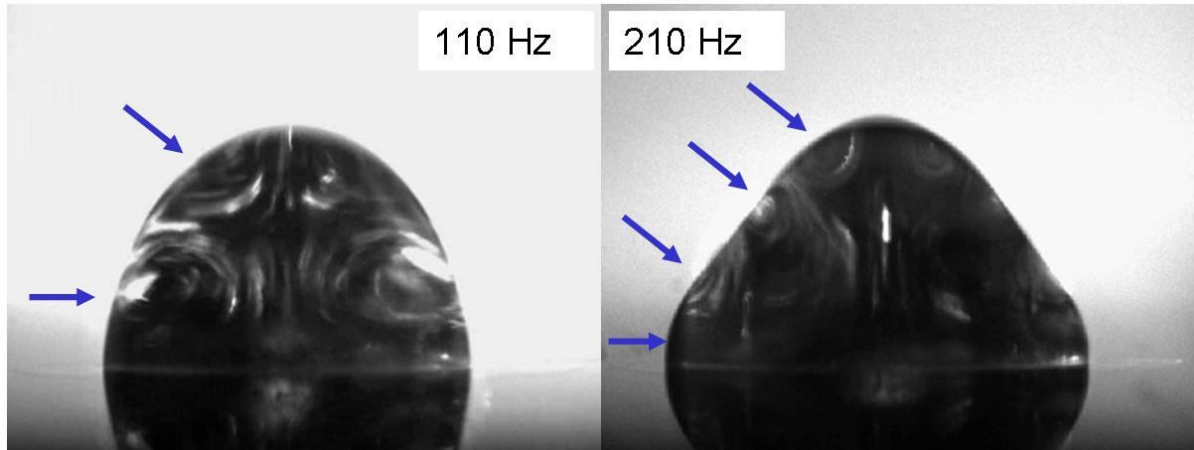


Fig. 108 Structures d'écoulement et modes oscillants visualisés à différentes fréquences. A gauche, la goutte oscille avec un mode 2 ; à droite, avec un mode 4. Les flèches bleues indiquent la position du centre des vortex.

On peut alors vérifier que l'écoulement à 2 vortex correspond à des oscillations de mode 2, l'écoulement à 4 vortex à des oscillations de mode 4. Ces deux structures d'écoulement sont stationnaires, très stables et reproductibles. L'analyse de l'écoulement à l'aide du logiciel de micro-*PIV* permet de vérifier que le sens de rotation des structures tourbillonnaires est tout à fait conforme aux prédictions du modèle : l'écoulement au sommet de la goutte est dirigé vers le bas et chaque nœud est entouré d'une paire de vortex contrarotatif.

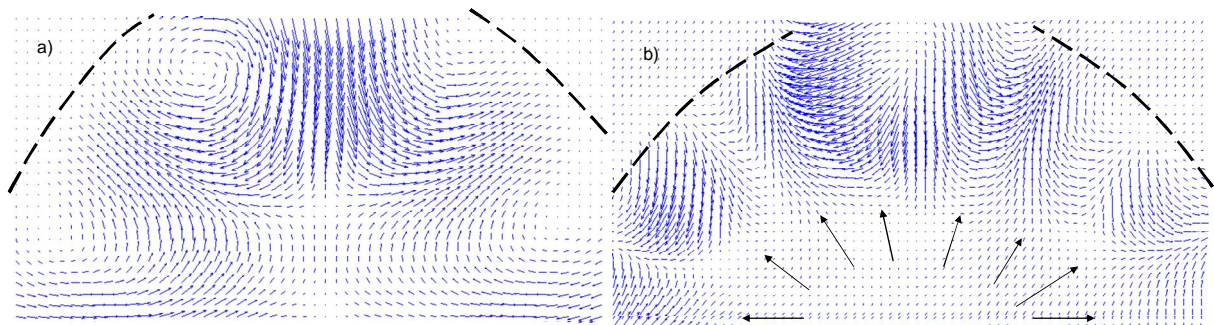


Fig. 109 Structures d'écoulements tourbillonnaires obtenues par le logiciel de micro-*PIV* pour le mode 2 (a) et 4 (b). Les flèches noires et le contour en pointillé ont été ajouté pour représenter l'emplacement des tourbillons et le contour de la goutte respectivement.

Pour des oscillations de degré 6, l'écoulement est plus difficile à obtenir car la structure se déstabilise facilement. En balayant la fréquence dans le domaine fréquentiel du mode 6, on arrive néanmoins à capturer la structure à 6 vortex. Au-delà du mode 6, les structures d'écoulements sont fortement instationnaires et le caractère axisymétrique est perdu.

c. Vélométrie en goutte

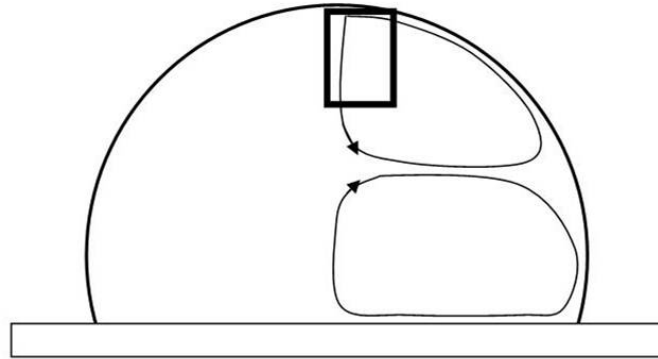


Fig. 110 Emplacement de la fenêtre d'interrogation (rectangle noir) dans lequel s'effectue la mesure de vitesse.

L'observation expérimentale montre que la vitesse d'écoulement dans le volume est maximale au niveau du tourbillon créé au sommet de la goutte, ce qui est confirmé par le calcul numérique (Fig. 103). Afin de capter les vitesses les plus significatives, nous concentrons la mesure au voisinage de l'apex de la goutte avec la fenêtre de mesure est représentée sur la figure 110. Pour cela nous repérons la position des particules sur deux images successives prises à intervalle de temps donné. Cependant dans notre configuration, la mesure de vitesse n'est pas immédiate et une étape intermédiaire est nécessaire pour prendre en compte la déformation optique induite par la forme de la goutte. En effet, la courbure de la goutte associée au changement d'indice optique a pour conséquence de modifier le chemin optique des rayons lumineux (Fig. 111), mais cette modification n'est pas uniforme et dépend de la variable spatiale : au centre de la goutte, les distances sont allongées tandis qu'à la périphérie, elles sont contractées. La position apparente des traceurs telle qu'elle apparaît sur l'image prise par la caméra doit donc être corrigée avant de procéder au calcul de vitesse. Le détail de cette correction est donné par Kang et *al.* (2004). Une erreur de calcul est néanmoins présente dans cet article et l'algorithme est alors repris et corrigé par Minor et *al.* (2007). L'algorithme repose sur l'hypothèse que la goutte est une calotte sphérique, hypothèse que nous adopterons également et que nous discuterons par la suite.

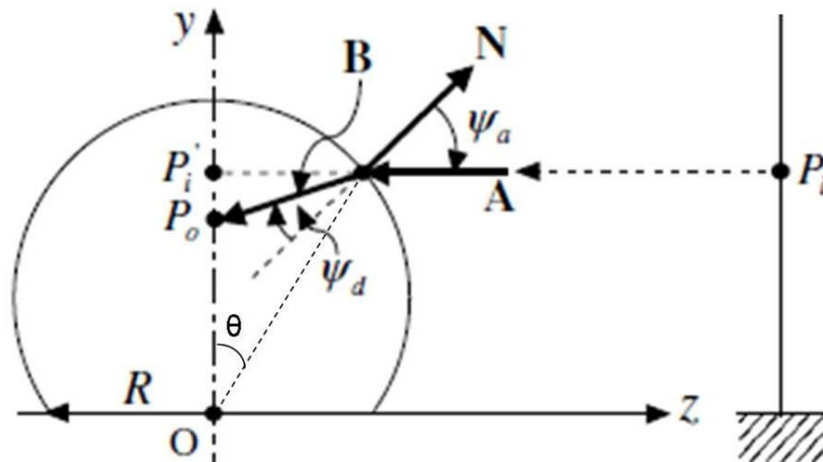


Fig. 111 Illustration de l'effet de lentille induit par l'interface de la goutte sur la position d'un traceur. Image tirée de [Kang, Leel et al. 2004]. Le vecteur N représente la normale à la surface de la goutte et le vecteur B la direction du rayon transmis dans la goutte.

La position d'un traceur dans l'image (x_i, y_i) est repérée en utilisant la macro '*PointPicker*' sur *ImageJ*. Ainsi, en pointant la même particule sur plusieurs images consécutives, on dispose des coordonnées spatiales au cours de son mouvement. Ces coordonnées sont alors transformées suivant l'algorithme de correction afin de déterminer leur position réelle dans la goutte. Les expressions permettant de passer des coordonnées apparentes (x_i, y_i) aux coordonnées réelles (x_0, y_0) sont (Minor *et al.*, 2007) :

$$x_0 = x_i + z_s f \tan(\Psi_a - \Psi_d)(r_s + b \cos(\theta)) \sin(\theta) \sin(\phi_s), \quad (184)$$

$$y_0 = y_i + z_s f \tan(\Psi_a - \Psi_d)(r_s \cos(\theta) - b \sin^2(\theta))^2, \quad (185)$$

Avec,

$$z_s = \sqrt{(r_s^2 - x_s^2 - y_s^2)}, \quad (186)$$

$$r_s = \frac{1}{2}(R + \sqrt{R^2 + 4by_s}). \quad (187)$$

R, le rayon de mouillage de la goutte, et b, un paramètre définissant la forme de la goutte :

$$r = R + b \cos(\theta). \quad (188)$$

Les angles sont définis par les expressions :

$$\theta = a \cos\left(\frac{y_0}{r_s}\right), \quad (189)$$

$$\phi_s = a \cos\left(\frac{x_0}{\sqrt{x_0^2 + z_s^2}}\right), \quad (190)$$

$$\Psi_a = a \cos\left(\frac{\sin(\theta) \cos(\phi_s)(r_s + b \cos(\theta))}{\sqrt{r_s^2 + b^2 \sin^2(\theta)}}\right), \quad (191)$$

$$\Psi_d = a \sin\left(\frac{n_a}{n_g} \sqrt{1 - \cos^2(\Psi_a)}\right), \quad (192)$$

avec n_a et n_g les indices optiques de l'air et de la goutte, soit 1 et 1,33 respectivement.

Enfin, la fonction f s'écrit :

$$f = \frac{1}{\sqrt{(r_s + b \cos(\theta))^2 \sin^2(\theta) \sin^2(\phi_s) + (r_s \cos(\theta) - b^2 \sin^2(\theta))^2}}, \quad (193)$$

Avec deux mesures de position aux instants t_0 et t_1 , on peut donc estimer la vitesse instantanée de la particule :

$$u = \frac{\sqrt{(x_0(t_1) - x_0(t_0))^2 + (y_0(t_1) - y_0(t_0))^2}}{t_1 - t_0}. \quad (194)$$

La mesure est réalisée sur une dizaine de traceurs ; l'écart type sur les différentes mesures varie de 10 à 30 % et la valeur de vitesse retenue correspond à la moyenne des mesures. La principale approximation de la méthode de mesure est que nous considérons la surface de la goutte comme étant une calotte sphérique afin de pouvoir réutiliser les modèles de correction optique existants. Ceci peut paraître en contradiction avec les observations faites dans la partie A sur les oscillations de la goutte. Néanmoins, étant donné que la fréquence

d'acquisition des images par la caméra rapide (100 Hz) est bien inférieure à la fréquence d'oscillation de la goutte (deux fois la fréquence du signal électrique, donc supérieure à 200 Hz) on peut alors considérer le profil moyen de la goutte pour nos mesures de vitesse. Ce profil moyen dévie d'une calotte sphérique à basse fréquence (70 Hz à 200 Hz) mais s'en approche de plus en plus lorsque la fréquence de la goutte augmente car les amplitudes d'oscillation sont plus faibles. Pour une goutte de 1,5 μl , la calotte sphérique est décrite par les paramètres R et b dont la valeur est 0,9 mm et 0,1 mm respectivement (équation (188)). Les vitesses obtenues par correction optique sont supérieures à celles mesurées sans correction d'environ 20 à 25%.



Fig. 112 Exemple d'image prise par la caméra rapide (retravaillée pour augmenter le contraste) et utilisé par le logiciel de micro-PIV.

Les vitesses d'écoulement mesurées expérimentalement au sommet de la goutte sont représentées en fonction du potentiel électrique (Fig. 113) :

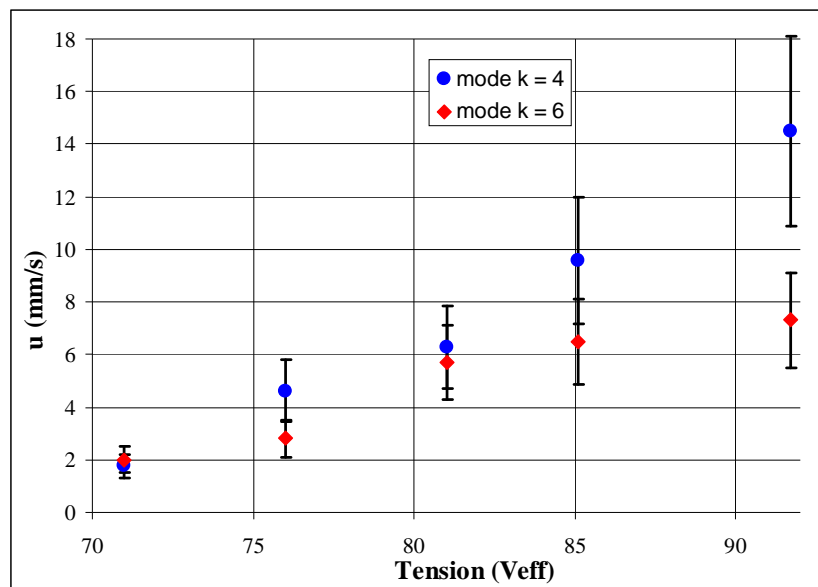


Fig. 113 Mesures de vitesse à l'apex de la goutte en fonction du potentiel électrique appliqué.

On observe ici que la vitesse d'écoulement au sommet de la goutte augmente avec la tension électrique et que pour une tension électrique donnée, l'écoulement du mode 4 est plus rapide que celui du mode 6. En effet, les gouttes oscillent à des amplitudes et des fréquences différentes mais c'est l'amplitude qui est le paramètre dominant (la vitesse de dérive est

proportionnelle à la fréquence et au carré de l'amplitude d'oscillation). Ainsi la mode 4 oscille moins vite que le mode 6 mais son amplitude, (paramètre dominant sur la fréquence) est beaucoup plus grande à une tension donnée (0,12 contre 0,07 à 91,7 V_{eff}). L'écoulement est donc plus rapide.

Les courbes de la figure 113 sont représentées en fonction du potentiel électrique. Une représentation en fonction des amplitudes relatives permet toutefois d'introduire aisément les valeurs calculées numériquement et de les comparer aux valeurs expérimentales. C'est ce qui est donné par la figure 114. Les valeurs de vitesse mesurées et calculées numériquement sont représentées pour les modes d'oscillation 2, 4 et 6.

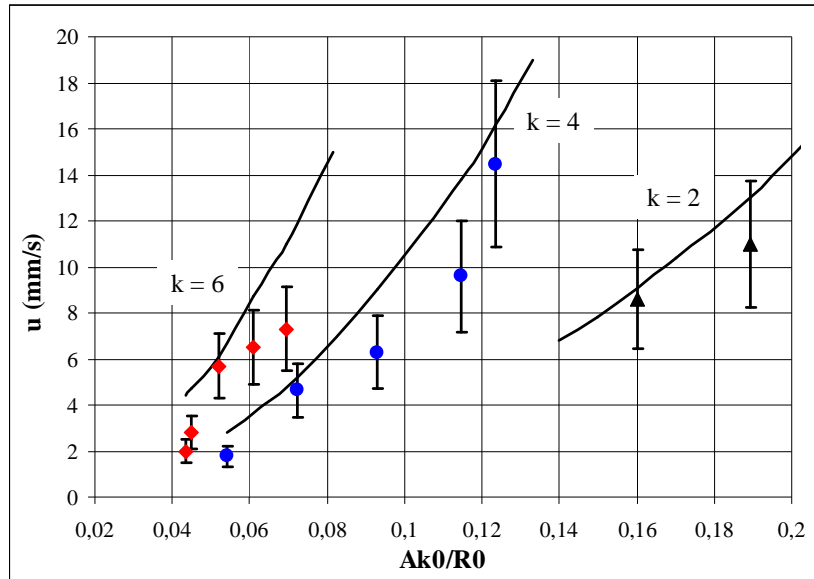


Fig. 114 Comparaison entre les vitesses expérimentales mesurées et les vitesses issues de la simulation numérique (courbes noires) en fonction de l'amplitude des oscillations et pour différents modes d'oscillations.

On note que l'ordre de grandeur des vitesses mesurées expérimentalement est confirmé par le calcul numérique. Celui-ci semble toutefois surestimer les valeurs expérimentales.

D'après l'expression donnant la vitesse de dérive en fonction des paramètres d'oscillations (équation (182)), on déduit que l'écoulement sera plus rapide si pour une amplitude d'oscillation donnée, la goutte oscille à une fréquence plus grande. Ceci est bien vérifiée à partir de la figure 114 : à amplitude d'oscillation égale, la vitesse maximale la plus grande correspond au mode de degré le plus élevé. Ainsi, la vitesse produite par le mode 6 pour une amplitude relative d'environ 0,07 est supérieure à la vitesse du mode 4 pour la même amplitude (7 mm/s contre 4,6 mm/s respectivement). Ceci s'explique par des oscillations de goutte de fréquences supérieures pour le mode 6 (fréquence d'alimentation 360 Hz) à celles du mode 4 (fréquence d'alimentation 210 Hz) tandis que leur amplitude est sensiblement la même.

En résumé, le sens d'écoulement, le nombre, la taille et l'emplacement des structures tourbillonnaires correspondent très bien avec les prédictions du modèle numérique, tandis que l'ordre de grandeur et les évolutions des vitesses sont globalement respectés, démontrant ainsi le rôle du courant de dérive dans le phénomène d'écoulement. Cependant, les structures non-axisymétriques et peu reproductibles observées au-delà du mode 6 ne peuvent être prédites par le modèle hydrodynamique proposé ici.

5. Ecoulements non-axisymétriques en goutte

a. Mise en évidence

La structure d'écoulement censée être visualisée pour le mode 8 d'après le modèle développé est représentée sur la figure 115 (a). Le calcul prévoit des structures d'écoulement comprenant 8 tourbillons localisés près de la surface de la goutte.

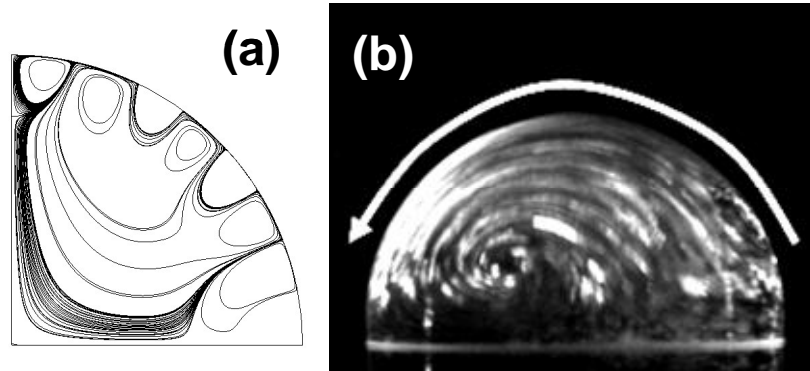


Fig. 115 Calcul numérique de la structure d'écoulement du mode 8 (a) et exemple de structure observée expérimentalement au mode 8 (b).

En pratique toutefois, cette structure d'écoulement n'a jamais été observée expérimentalement ni aucune autre structure multi-tourbillonnaires de degré supérieur à 6. En effet, l'observation par la tranche laser montre des écoulements non axisymétriques très instables et non reproductibles dont un exemple est représenté sur la figure 115 (b). La visualisation de dessus montre que l'écoulement en surface présente une structure bipolaire récurrente (Fig. 116) dont les vitesses sont de l'ordre du millimètre par seconde (Fig. 117). La structure est néanmoins fortement instable dans la mesure où l'orientation azimutale du dipôle est apparemment aléatoire et imprévisible. Finalement, les différents modes d'oscillations de degré supérieur ou égal à 8 n'imposent pas de structures d'écoulement spécifiques. L'écoulement n'est donc plus maîtrisé.

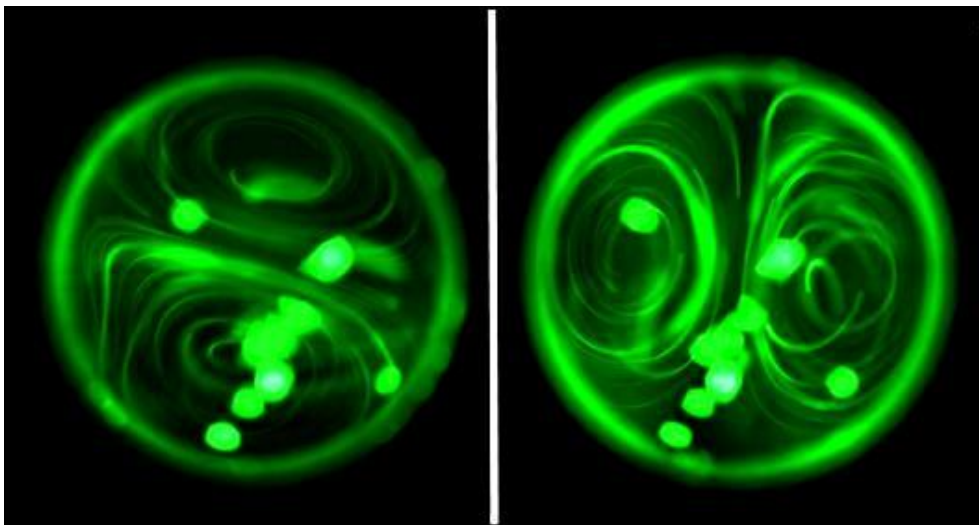


Fig. 116 Structures d'écoulements hydrodynamiques observés pour des modes supérieurs au degré 6. L'orientation du dipôle tourbillonnaire est aléatoire. L'espace inter-électrodes est dirigé suivant l'horizontale.

b. Origines possibles

Le modèle numérique permet de retrouver de manière très satisfaisante les écoulements axisymétriques des modes 2, 4 et 6 permettant ainsi de confirmer l'origine des écoulements en goutte et de valider le phénomène de courant de dérive. Néanmoins, en dépit du motif d'électrodes utilisé (électrodes coplanaires hémi-circulaires, espacées de 3 μm) qui assure un phénomène d'électromouillage et d'oscillations axisymétriques, des configurations d'écoulement non axisymétriques sont observées au-delà du mode 6. Les structures d'écoulement ne sont plus associées à un mode d'oscillation particulier et elles ne correspondent plus aux configurations prévues par le modèle. Elles ne remettent pas pour autant en cause le phénomène de courant de dérive ; en effet, la plage fréquentielle dans laquelle sont observés les écoulements coïncide avec celle pour lesquelles les oscillations sont observées. Ainsi, il s'agit très probablement d'une limite du modèle pour lequel des phénomènes négligeables à basse fréquence deviennent prépondérants au-delà du mode 6. On rappelle que le nombre adimensionnel R_s diminue peu à peu à mesure que le mode augmente mais que le type d'écoulement n'est pas censé changer de manière significative entre 100 Hz et 1000 Hz (Tab. 18) et que la perte d'axisymétrie ne peut donc pas provenir de ce paramètre. Certaines hypothèses peuvent être avancées. L'explication de ces structures d'écoulement reste cependant à approfondir et nous nous contenterons de donner quelques pistes :

i) Des effets d'oscillations non linéaires ont été mis en évidence dans la partie A et notamment sur le spectre d'oscillation (Fig. 97) montrant qu'à la résonance la goutte oscille avec un mode dominant mais également des modes secondaires. L'importance relative de ces modes secondaires augmente à mesure que la fréquence augmente, l'amplitude du mode dominant étant moins importante. L'influence de ces modes n'a pas pu être vérifiée numériquement mais la structure pourrait être très grandement modifiée par une combinaison des modes. Néanmoins, le caractère axisymétrique devrait être conservé. Un élément supplémentaire doit être pris en compte.

ii) La perte d'axisymétrie de l'écoulement pourrait être due à l'adsorption de billes sur la surface de la puce modifiant ainsi le régime d'oscillations qui perdrait à l'échelle microscopique son caractère axisymétrique. L'axisymétrie des oscillations sur une très large bande fréquentielle a été observée sur une goutte de PBS dans la partie A. Dans la partie B, des billes sont introduites dans la goutte et certaines d'entre elles se collent à la surface de la puce. Pour les modes les plus amples, cette agglomération de billes est négligeable et sans effet, mais pour les modes d'amplitude plus faible, elle pourrait être suffisante pour modifier localement le mouillage et déstabiliser les structures multi-tourbillonnaires au profit de structures non-axisymétriques. Le rôle de l'évaporation de la goutte sur la stabilité des structures doit également être étudié. Le caractère non reproductible de ces écoulements montre qu'un ou plusieurs paramètres non-contrôlés pourraient être impliqués. Dans la partie suivante, on montrera comment imposer une structure d'écoulement stable et robuste sur une large bande fréquentielle.

6. Spectre d'écoulements en goutte

Le spectre de vitesse mesuré au sommet de la goutte donne un aperçu de l'évolution des vitesses en fonction de la fréquence (Fig. 117) :

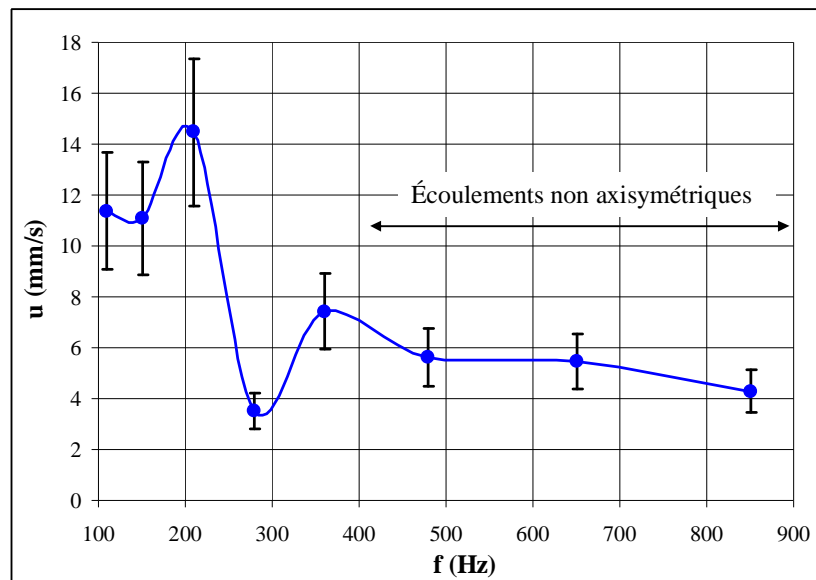


Fig. 117 Mesures de vitesses expérimentales à l'apex de la goutte en fonction de la fréquence. La tension appliquée est de $91,7 V_{\text{eff}}$ à l'exception de la mesure à 110 Hz pour laquelle la tension est de $75 V_{\text{eff}}$.

La courbe montre un premier pic de vitesse aux alentours de 210 Hz puis un second pic vers 360 Hz correspondant aux résonances des modes 4 et 6 respectivement. La résonance du mode 2 a lieu pour des fréquences plus faibles pour lesquelles on peut s'attendre à des écoulements plus rapides encore. C'est en effet ce que nous observons mais l'estimation des vitesses dans ce cas est rendue plus difficile, en effet :

i) La correction optique utilisée n'est plus valable en raison des amplitudes d'oscillation trop grandes.

ii) L'acquisition d'images exploitables (particules bien individualisées) nécessiterait l'augmentation de la fréquence d'acquisition d'images de la caméra rapide (de 100 à 200 images/s). Or la puissance d'éclairage produite par la nappe devient alors insuffisante.

Des expériences supplémentaires seraient donc nécessaires pour étudier les vitesses d'écoulement à la résonance du mode 2. Nos observations nous conduisent néanmoins à penser que des vitesses maximales de l'ordre de 20 à 30 mm/s pourraient être mesurées.

Au-delà de 450 Hz environ, l'écoulement n'est plus axisymétrique (Fig. 115) et la vitesse au sommet de la goutte diminue progressivement et semble se stabiliser autour d'une valeur seuil (4 mm/s environ).

Conclusion de la partie B :

Cette partie a permis de montrer le lien entre les oscillations de la goutte et l'écoulement produit. Le mécanisme de courant de dérive en électromouillage a été pour la première fois désigné par Ko *et al.* (2008) dans une étude expérimentale menée sur une goutte en configuration d'électrode plongeante. Ce lien n'est pas intuitif car la génération d'écoulements de dérive à partir d'oscillations sinusoïdales ne peut se comprendre qu'à travers l'intervention du terme non linéaire de l'équation de Navier-Stokes. Dans leur étude, les auteurs observent deux structures tourbillonnaires toroïdales (Fig. 27) mais curieusement à aucun moment ils n'évoquent la présence d'écoulements modaux multi-tourbillonnaires axisymétriques (Fig. 107) peut être en raison de la présence de l'électrode plongeante déstabilisant leur écoulement. Ici, on montre que des structures multi-tourbillonnaires apparaissent jusqu'au mode d'oscillation de degré 6. Ces écoulements modaux sont reproduits à partir d'un modèle numérique et la correspondance en termes de vitesse et de ligne de courant est tout à fait satisfaisante. Pour obtenir ce résultat, nous avons utilisé le modèle de Ko *et al.* (2009) développé dans une deuxième étude impliquant le courant dérive et portant sur un jet produit à l'extérieur d'une bulle oscillant avec un mode 2. Nous avons adapté ce modèle de manière à calculer la vitesse de dérive à l'intérieur de la goutte et pousser le calcul à des modes de degrés plus élevés allant jusqu'au mode 8. Le modèle fonctionne relativement bien, néanmoins, au-delà du mode 6, l'écoulement devient non-axisymétrique et peu reproductible. L'observation de dessus permet de corrélérer ces structures non-axisymétriques à des structures bipolaires qui s'orientent de manière aléatoire. On saisit alors ici l'importance d'avoir étudié dans le chapitre précédent les contraintes électriques tangentielles à la surface de la goutte. En effet, sans cela nous aurions probablement été tentés d'avancer des explications basées sur des effets électrohydrodynamiques pour essayer d'expliquer les structures que le modèle de courant de dérive n'explique pas. Grâce à l'étude menée dans le chapitre précédent, nous savons que nous pouvons exclure le rôle des contraintes électriques de surface dont l'ordre de grandeur est insuffisant et nous pouvons avancer d'autres pistes d'étude. Ces expériences montrent que mis à part à basse fréquence (du mode 2 au mode 6 soit entre 70 et 450 Hz environ) l'écoulement n'est pas reproductible et donc pas maîtrisé. Une solution pour rendre l'écoulement stable et reproductible sur une large bande fréquentielle consiste à utiliser une géométrie d'électrodes imposant une configuration de mouillage et d'oscillation particulière. C'est ce que nous étudions dans la partie qui suit.

Partie C : Configuration d'écoulement quadripolaire

***L**es premières observations d'écoulement en gouttes, préalablement réalisées avant le lancement de la thèse furent réalisées sur un motif d'électrodes rectangulaires. L'explication et l'origine de ces écoulements restaient inconnues. Une première piste nous a mené à considérer les contraintes électriques en surface comme un moteur éventuel, compatible en tout cas avec l'échelle microfluidique. Après quelques observations, portant notamment sur le phénomène d'oscillations, nous avons délaissé cette configuration rectangulaire afin de mener une approche scientifique multiplexée, fondée à la fois sur des études théorique, numérique et expérimentale et sur un modèle physique nécessairement plus académique : un motif isotrope, c'est-à-dire circulaire et coplanaire comprenant deux électrodes en forme de demi-lunes et séparées de $3 \mu\text{m}$, permettant d'assurer à priori l'axisymétrie du mouillage et des oscillations (et des écoulements dans une certaine gamme de fréquence). Les contraintes électriques surfaciques ayant été écartées de toute implication dans le phénomène d'écoulement et le lien entre oscillations et écoulement étant vérifié, nous revenons maintenant à la configuration de départ comportant deux électrodes rectangulaires. Notre objectif est de comprendre la structure d'écoulement quadripolaire historiquement observée.*

1. Configuration d'étude

Le motif d'électrode utilisé est toujours coplanaire mais composé cette fois de deux électrodes rectangulaires séparées l'une de l'autre par un espace inter-électrodes de $3\mu\text{m}$. La surface de la puce est lubrifiée et la goutte de $1,5\mu\text{l}$ est déposée sur la puce. Une différence de potentiel électrique de $91,7 V_{\text{eff}}$ est appliquée aux électrodes. Les expériences d'électromouillage, d'oscillations et d'écoulements sont réalisées selon les protocoles présentés précédemment. La visualisation de profil est réalisée suivant deux directions orthogonales représentées sur la figure 118. Pour l'une des vues de profil, l'espace inter-électrodes est orthogonal à la direction d'observation ; on parlera d'observation suivant la direction transversale ; pour cette configuration et cette direction d'observation, les électrodes sont disposées dans le sens de la largeur et on utilisera également l'expression : observation suivant la largeur des électrodes. Par opposition, la deuxième vue de profil sera la vue suivant la direction longitudinale, ou suivant la longueur des électrodes.

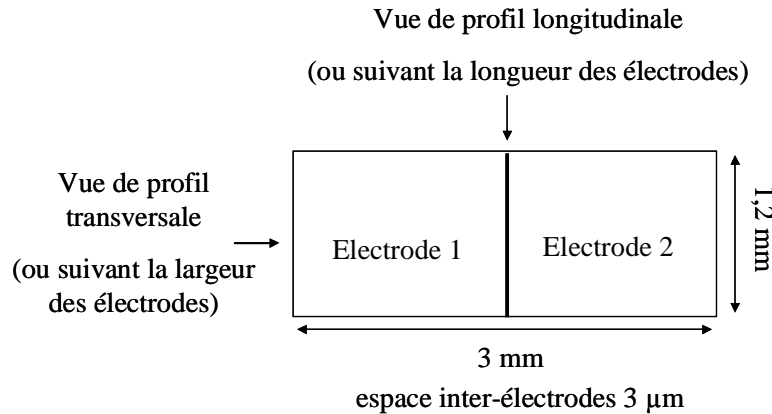


Fig. 118 Motif d'électrodes rectangulaires et directions d'observation de la vue de profil utilisée tout au long de cette partie.

2. Observation des écoulements

On observe les écoulements dans la goutte qui apparaissent pour des fréquences supérieures à 300 Hz environ. Les écoulements produits à des fréquences plus basses seront discutés plus loin. On a vu dans le chapitre précédent qu'au-delà de 450 Hz, les structures multi-tourbillonnaires axisymétriques disparaissaient et laissaient place à des configurations non axisymétriques et non reproductibles.

Dans le cas de la géométrie d'électrodes rectangulaires, la structure d'écoulement est très robuste et reproductible : entre 300 Hz et 10 kHz, la configuration d'écoulement est invariante et fait apparaître une structure quadripolaire (Fig. 119). Contrairement à l'écoulement bipolaire mis en évidence précédemment, pour lequel l'orientation des tourbillons était aléatoire, ici, les tourbillons sont parfaitement symétriques par rapport à l'espace inter-électrodes et la configuration d'écoulement ne change pas y compris lorsque la fréquence est modifiée. Les structures d'écoulement sont contrarotatives et vue de dessus, le tourbillon situé dans le coin haut droit de la goutte (Fig. 119(a)) tourne dans le sens indirect (sens horaire). La visualisation sur une tranche laser montre que la goutte est partagée en 4 cellules convectives.

L'ordre de grandeur des vitesses mis en jeu est comparable à celui qui a été mesuré dans la configuration circulaire (Fig. 117).

On se propose de déterminer pourquoi dans cette configuration l'écoulement est particulièrement reproductible et adopte une configuration quadripolaire. Le mouillage et les oscillations permettent de donner un élément d'explication.

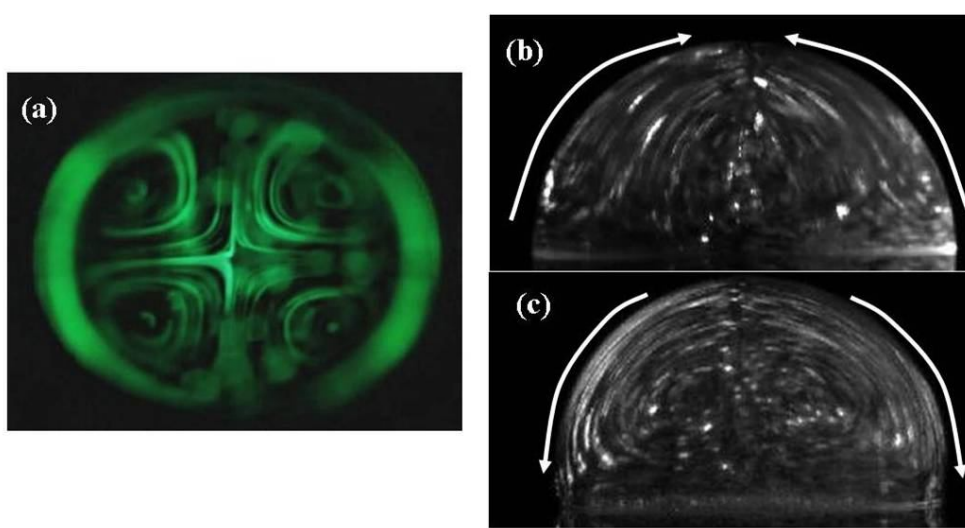


Fig. 119 Configuration d'écoulement quadripolaire : (a) vue de dessus (les électrodes sont orientées de la même manière que sur le schéma de la figure (Fig. 118)); (b) vue suivant la longueur des électrodes ; (c) vue suivant la largeur des électrodes.

3. Electromouillage et régime d'oscillation en configuration non axisymétrique

Dans le cas d'électrodes hémicirculaires séparées par un espace de $3 \mu\text{m}$, on a vu que le mouillage de la goutte ainsi que les oscillations sont largement axisymétriques. En revanche, dans ce cas précis, la géométrie des électrodes impose à la goutte un régime de mouillage et d'oscillations « orienté » suivant la longueur des électrodes tandis que l'étalement de la goutte est restreint suivant la largeur des électrodes.

a. *Electromouillage « orienté »*

Les courbes d'électromouillage d'une goutte de PBS sont représentées sur la figure 121, et les diamètres de mouillage suivant les deux directions d'observation sont représentés sur la figure 122. On rappelle que les caractéristiques électriques de la puce sont identiques à celles utilisées dans les parties précédentes (mêmes épaisseurs de couches diélectriques, mêmes matériaux...). On observe que la goutte ne mouille pas de la même manière suivant les deux directions principales : elle mouille avec un angle de mouillage conforme à la loi de Berge suivant la longueur des électrodes mais son étalement est géométriquement limité par la largeur des électrodes.

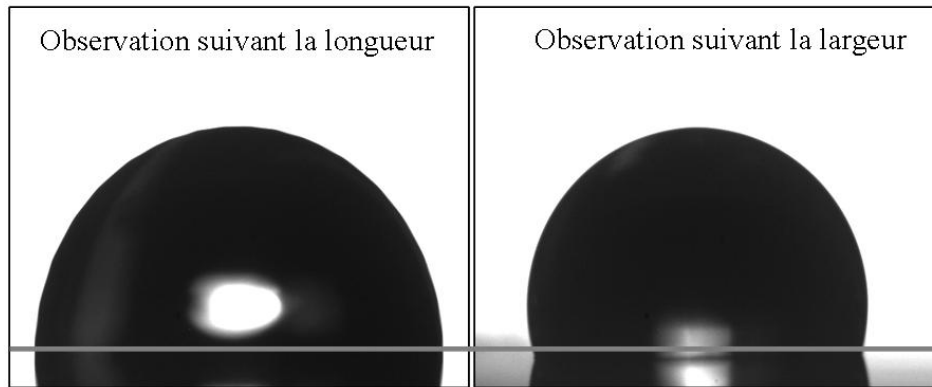


Fig. 120 Vue de profil de l'étalement de la goutte suivant les deux directions d'observation ; la différence de potentiel appliquée est de 91,7 V_{eff}.

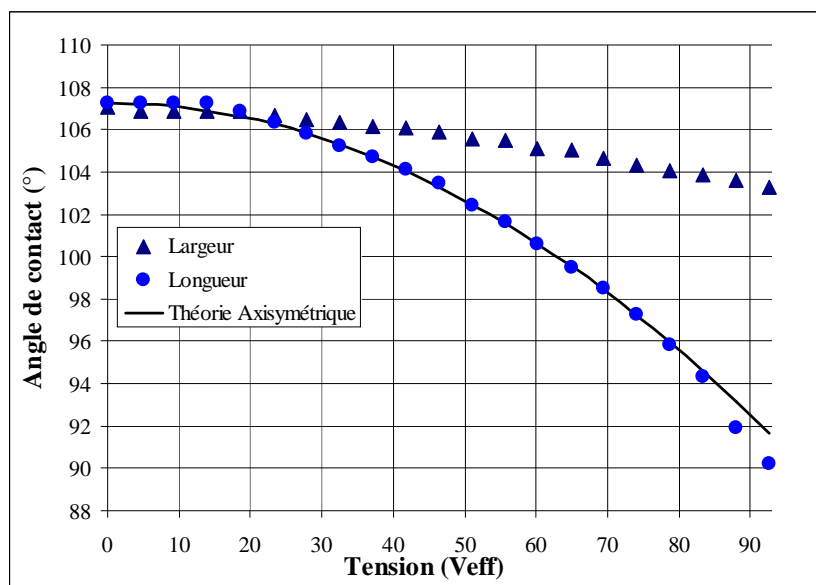


Fig. 121 Angle de mouillage de la goutte suivant les deux directions d'observation.

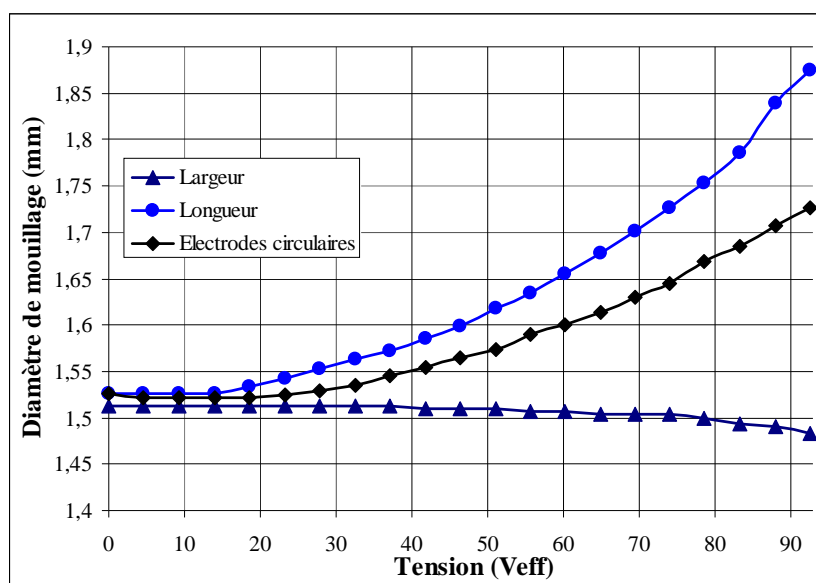


Fig. 122 Diamètre de mouillage de la goutte suivant les deux directions d'observation en fonction du potentiel électrique appliqué.

La géométrie des électrodes permet d'expliquer cet écart (Fig. 122) : suivant la largeur, les électrodes (1,2 mm de largeur) sont complètement recouvertes par la goutte (diamètre de mouillage de 1,5 mm environ). Celle-ci ne peut donc pas s'étaler davantage suivant cette direction et le diamètre de mouillage reste à peu près constant (l'évaporation de la goutte entraîne une légère diminution du diamètre en fin d'expérience). Au contraire, suivant la direction longitudinale, les électrodes sont suffisamment longues (3mm) et la goutte peut s'étaler librement. On observe suivant cette direction d'observation, une augmentation du diamètre de la goutte avec l'amplitude du signal électrique. L'absence d'électromouillage suivant la direction transversale semble être compensée par un régime d'électromouillage très efficace suivant la direction longitudinale, pour lequel l'étalement de la goutte est très supérieur à celui obtenu par un motif à électrodes hémi-circulaires (Fig. 47) produisant un étalement axisymétrique. Ainsi, la géométrie des électrodes impose un régime d'électromouillage orienté suivant une direction privilégiée, en l'occurrence la direction longitudinale.

b. Oscillations « orientées »

La goutte oscille avec des modes dont la résonance (Fig. 124) se produit à des fréquences qui approchent les valeurs prédites par Lamb (équation (142)). Néanmoins l'écart entre les valeurs expérimentales et théoriques est plus grand dans cette configuration (entre 10 et 20 %) que dans la configuration axisymétrique (Fig. 94, inférieur à 10 %). Ceci s'explique par la forme allongée de la goutte pour laquelle l'hypothèse d'axisymétrie n'est plus vérifiée. Pour le mode 2, la résonance semble se produire à une fréquence supérieure à la fréquence théorique tandis que pour tous les autres modes au contraire, les valeurs relatives sont inférieures à 1. Cependant, pour le mode 2, le potentiel électrique varie en même temps que la fréquence en raison de la contrainte expérimentale portant sur l'amplificateur et il est donc plus difficile de déterminer si l'amplification du mode est due à la résonance ou si elle est due à l'augmentation du potentiel électrique ce qui entache la mesure d'une incertitude beaucoup plus grande.

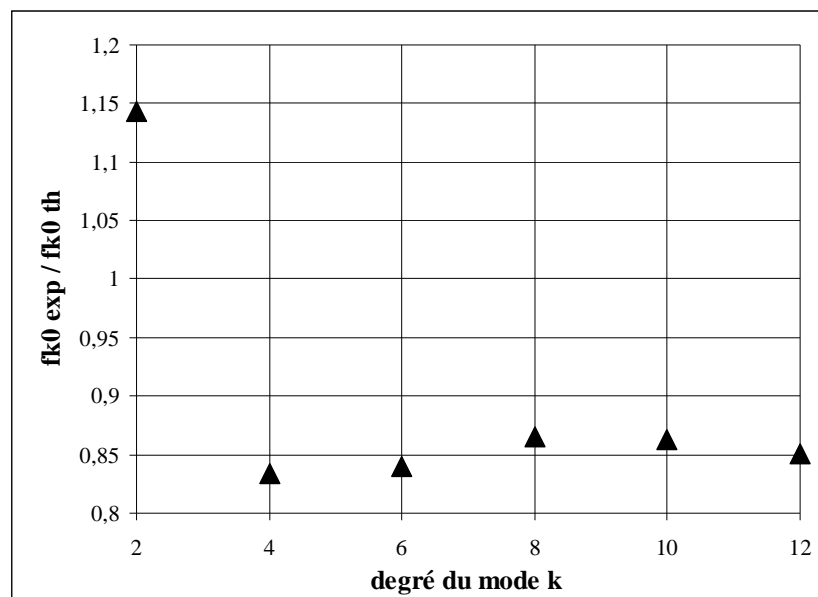


Fig. 123 Rapport des fréquences de résonance expérimentales et théoriques dans la configuration à électrodes rectangulaires.

En analysant les profils de goutte en oscillation, on observe des formes très différentes suivant la direction d'observation (Fig. 124).

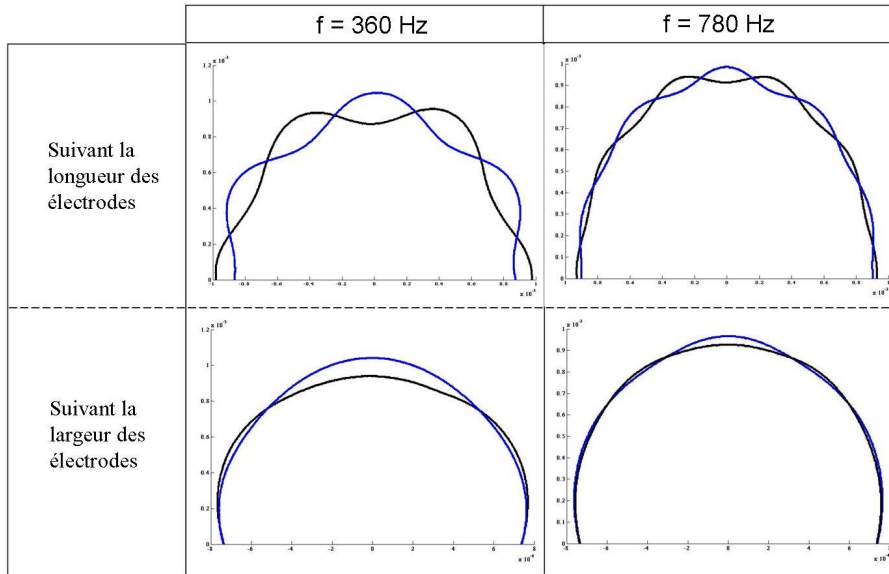


Fig. 124 Profils oscillants observés suivant les deux directions d'observation.

Suivant la direction longitudinale, les oscillations sont semblables à celles observées en configuration axisymétrique mais observées suivant la largeur, les profils de goutte sont très différents de ce qui a pu être observé auparavant : la goutte adopte une forme plus ou moins circulaire et difficilement caractérisable. Cette dissymétrie d'oscillation s'explique par la géométrie des électrodes qui contraint le régime d'oscillation suivant la largeur tandis que suivant la longueur des électrodes, la goutte est libre d'osciller normalement. L'anisotropie de mouillage induite par la géométrie d'électrodes se répercute donc également sur le mode d'oscillations de la goutte.

c. *Eléments d'explication de la configuration d'écoulement quadripolaire*

Etant donnée l'anisotropie de mouillage, la goutte oscille avec une forme tridimensionnelle particulièrement complexe. L'observation montre qu'au delà de 300 Hz environ, la configuration d'écoulement quadripolaire reste identique en dépit du changement de mode observé sur les profils transversaux (Fig. 124). Ceci signifie que la configuration d'écoulement n'est pas imposée par le mode d'oscillation de la goutte comme cela avait pu être le cas dans la partie précédente (Fig. 108). On peut donc dans un premier temps mettre de côté la forme tridimensionnelle de la goutte et se concentrer uniquement sur les régimes de mouillage et d'oscillations orientés mis en évidence dans cette partie (Fig. 122 et Fig. 125). On ne considère plus que les oscillations longitudinales dans le plan de mouillage afin de voir ce qu'elles peuvent induire si l'on reprend l'approche fondée sur le courant de dérive.

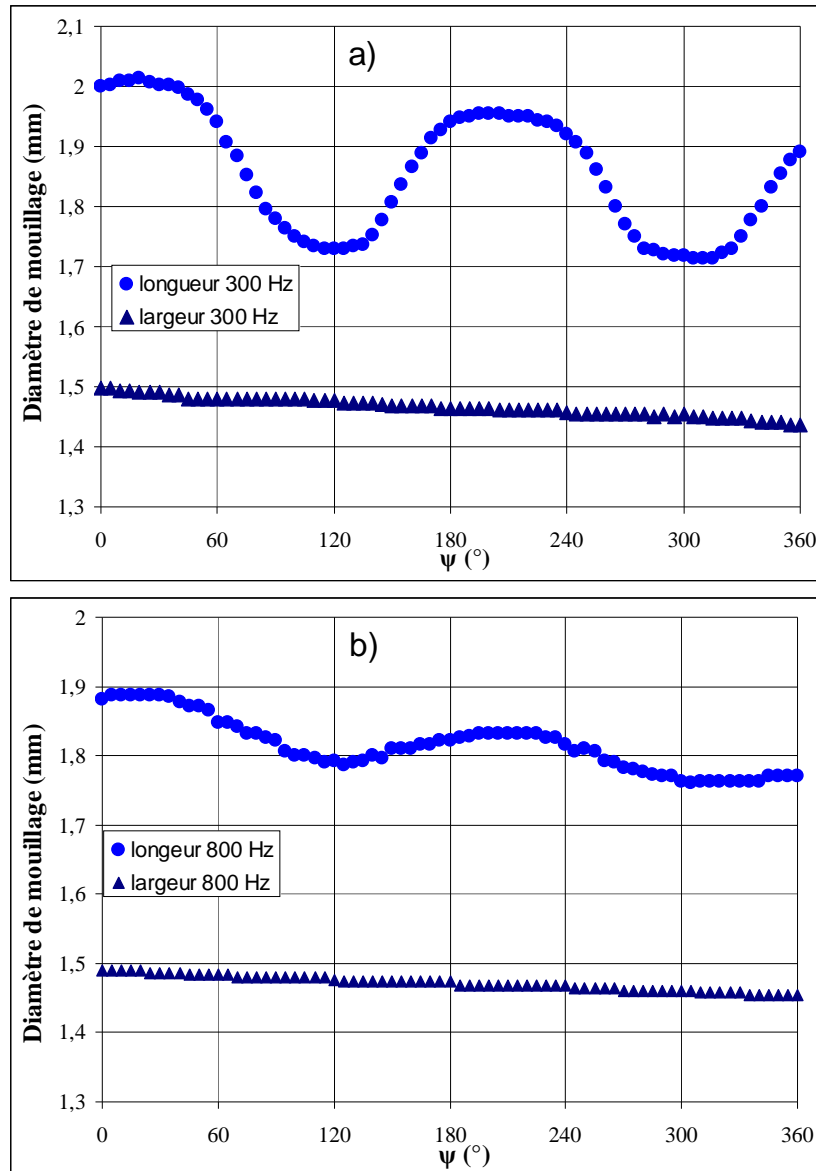


Fig. 125 Evolution du diamètre de mouillage de la goutte suivant les deux axes d'observation, pour des fréquences d'actuation de 300 Hz (a) et 800 Hz (b), respectivement

On peut voir sur les courbes représentées sur la figure 125 que la ligne de contact est quasiment fixe suivant la largeur des électrodes tandis qu'elle oscille librement suivant la longueur des électrodes avec une amplitude importante : près de 150 μm d'amplitude d'oscillation à 300 Hz et 50 μm à 800 Hz. A titre de comparaison, l'amplitude d'oscillation de la ligne de contact en configuration axisymétrique est d'environ 50 μm à 300 Hz et 30 μm à 800 Hz. On peut donc considérer que la goutte, dont la forme est allongée, oscille suivant la longueur avec son amplitude maximale et suivant la largeur avec une amplitude quasiment nulle.

Le schéma représenté sur la figure 126 permet d'illustrer la situation de mouillage et d'oscillation de la goutte ainsi que la structure d'écoulement résultante qui devrait être engendrée par le phénomène de courant de dérive.

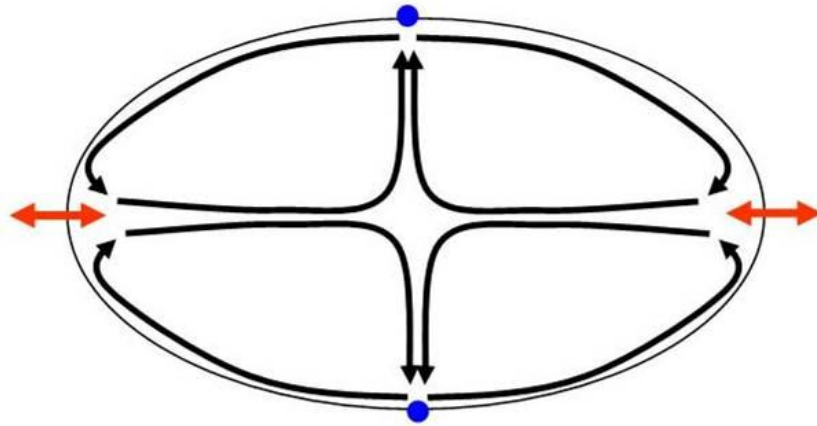


Fig. 126 Schéma de principe de la configuration quadripolaire. La géométrie allongée de la goutte est contrainte par la géométrie d'électrodes. Les oscillations maximales (flèches rouges) et minimales (points bleus) se produisent aux pôles de la goutte.

D'après le phénomène de courant de dérive (équation (176)), la vitesse de dérive est dirigée des nœuds qui, dans cette configuration, sont situés de part et d'autre de l'axe longitudinal (points bleus sur la figure 126) vers les ventres d'oscillations (flèches rouges). Les lignes de courant se referment sur elles-mêmes en volume pour satisfaire l'équation de continuité (équation (40)). On aurait ainsi création d'une structure d'écoulement quadripolaire. Afin de vérifier la validité de ce principe, nous mettons en place un modèle simplifié que nous résolvons numériquement.

d. Modèle exploratoire

Dans le modèle de la partie B, l'écoulement axisymétrique était imposé par le mode d'oscillation de la goutte ce qui nous avait conduit à considérer une section de goutte vue de profil. Ici, les observations montrent que l'écoulement n'est plus imposé par le degré d'oscillation de la goutte et que le modèle précédent n'est donc plus valable. Le mécanisme de courant de dérive est conservé mais dans cette configuration le mode d'oscillations sur lequel il est basé doit être reconsidéré. Le modèle que nous proposons permet de calculer la vitesse de dérive à la surface de la goutte produite par des oscillations contenues dans un plan parallèle au plan de mouillage et orientées suivant une direction privilégiée (Fig. 126). L'écoulement est vu de dessus et la goutte est représentée par un cercle dont le contour oscille suivant la direction longitudinale des électrodes. Dans notre approche exploratoire, on ne se soucie pas de la forme tridimensionnelle de la goutte (Fig. 124) mais uniquement des oscillations longitudinales dans le plan de mouillage. On considère dans notre modèle que le rayon de mouillage de la goutte varie sinusoidalement au cours du temps suivant l'expression :

$$r = R_0 + b.\sin(\xi.t).\cos(\alpha), \quad (195)$$

où b est un paramètre mesurant l'amplitude d'oscillation de la goutte, R_0 est le rayon moyen de la goutte, ξ , sa pulsation d'oscillation et α , l'angle polaire défini dans le plan de mouillage et représenté sur la figure 127.

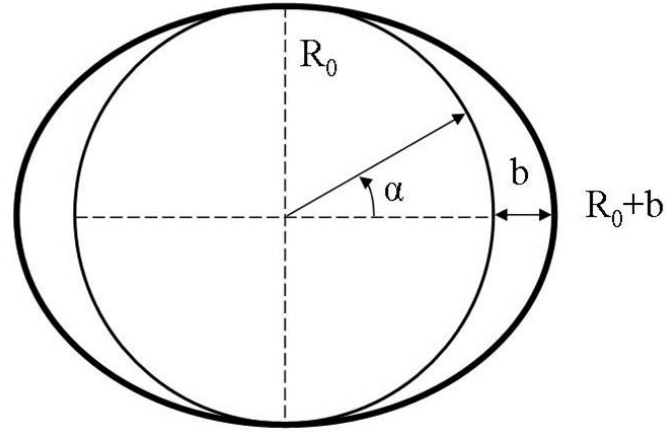


Fig. 127 Repère et paramètres du modèle d'oscillations orientées.

Ainsi, les oscillations de la goutte sont maximales lorsque l'angle α est égal à $0 (\pm n\pi)$ ($R_0 - b < r < R_0 + b$) et sont nulles lorsque α est égal à $\frac{\pi}{2} (\pm n\pi)$ ($r = R_0$). On recrée donc des oscillations de gouttes qui se rapprochent du régime d'oscillations orientées que l'on a observé dans les expériences. Le potentiel de vitesse associé est :

$$\frac{\partial r}{\partial t} = - \frac{\partial \Phi}{\partial r} \Big|_{r=R_0} = \xi \cdot b \cdot \cos(\xi \cdot t) \cdot \cos(\alpha) . \quad (196)$$

$$\Phi = -\xi \cdot r \cdot b \cdot \cos(\xi \cdot t) \cdot \cos(\alpha) . \quad (197)$$

La vitesse tangentielle créée par les oscillations orientées s'en déduit :

$$u^\infty = - \frac{1}{R_0} \frac{\partial \Phi}{\partial \alpha} \Big|_{r=R_0} . \quad (198)$$

$$u^\infty = \xi \cdot b \cdot \cos(\xi \cdot t) \cdot \sin(\alpha) . \quad (199)$$

Son amplitude est donc,

$$U^\infty = \xi \cdot b \cdot \sin(\alpha) , \quad (200)$$

et la vitesse de dérive s'écrit, en reprenant l'expression (176) et en l'adaptant à notre configuration :

$$U^s = - \frac{3}{4R_0 \xi} U^\infty \frac{dU^\infty}{d\alpha} = - \frac{3b^2 \xi}{8R_0} \sin(2\alpha) . \quad (201)$$

Par ailleurs, le calcul des paramètres associés au concept de vitesse de dérive sont dans notre configuration 2D polaire :

f signal	f goutte	b/R ₀	$\delta_s = \sqrt{\frac{\eta}{\rho \xi}}$	$\varepsilon = \frac{U_\infty}{\xi d}$	$R_s = \frac{\rho U_\infty^2}{\omega \xi}$
300 Hz	600 Hz	0,16	$\delta_s \approx 2.10^{-5}$	$\varepsilon \approx 0.15$	$R_s \approx 84$
800 Hz	1600 Hz	0,05	$\delta_s \approx 1.10^{-5}$	$\varepsilon \approx 5.10^{-2}$	$R_s \approx 25$

Tab. 19 Paramètres du courant de dérive induit par les oscillations dans la configuration à électrodes rectangulaires.

On reprend l'expression (133) pour le calcul de R_0 , ce qui donne pour une goutte de $1,5 \mu\text{l}$, un rayon moyen de $0,89 \text{ mm}$. Les valeurs de b correspondent aux amplitudes d'oscillation du rayon de mouillage mesurées (Fig. 125). Le tableau montre que le régime d'oscillations orientées observé dans cette configuration réunit les conditions nécessaires à l'émergence du courant de dérive et que l'équation (201) est utilisable dans notre configuration (ε et $\delta_s \ll 1$). On constate que les valeurs des paramètres sont quasiment identiques à celles que nous avons calculées dans la partie précédente (Tab. 18) justifiant ainsi que les vitesses d'écoulement observées soient du même ordre de grandeur.

Le logiciel *Comsol Multiphysics* permet de calculer l'écoulement induit dans la goutte par l'expression (201) imposée comme condition limite de vitesse aux frontières du domaine de calcul. Les lignes de courant ainsi que le champ de vitesse sont représentés dans la figure 128.

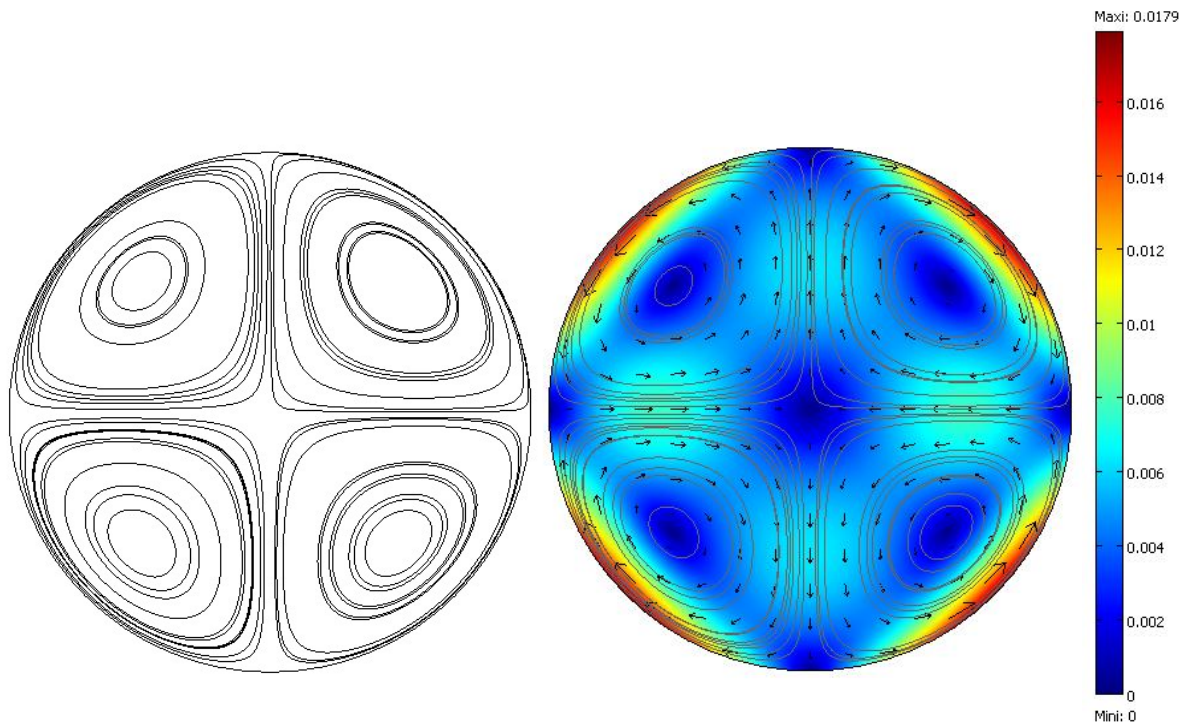


Fig. 128 Structure d'écoulement quadripolaire (à gauche), champ de vitesse (m/s) et orientation de l'écoulement (à droite) calculés à partir du modèle numérique basé sur le courant de dérive et sur le régime d'oscillations orientées pour une fréquence de 800 Hz.

e. Le modèle et ses limites

Bien que le modèle numérique s'appuie sur une forte approximation (pas de point de vue 3D), on constate que l'on peut reproduire à partir d'une approche 2D, une structure d'écoulement très proche de celle que nous observons expérimentalement. Les vitesses en volume sont du même ordre de grandeur que les vitesses observées expérimentalement (mm/s) et les 4 cellules de convection tournent dans le même sens que celui observé expérimentalement et prédit par le mécanisme de courant de dérive (vitesse tangentielle orientée des nœuds vers les ventres d'oscillation). Ceci accrédite la thèse suivant laquelle la structure d'écoulement est essentiellement imposée par le régime d'oscillations orientées suivant la direction longitudinale des électrodes. Un raisonnement basé sur le courant de dérive et sur la position des nœuds et ventres d'oscillation permet en effet de recréer la configuration d'écoulement. Des observations complémentaires montrent que lorsque le diamètre de la goutte est plus petit

que la largeur des électrodes, le mouillage redevient axisymétrique, la configuration quadripolaire disparaît alors au profit des écoulements observés dans la partie B.

Dans ce régime d'écoulement, la géométrie des électrodes impose la configuration d'écoulement indépendamment de la forme tridimensionnelle de la goutte (Fig. 124), ce qui se traduit par un écoulement indépendant de la fréquence du signal électrique. Néanmoins, ce modèle numérique est insuffisant pour expliquer les écoulements à fréquences plus basses (inférieures à 300 Hz) et une approche 3D plus complexe doit alors être adoptée. En effet, l'amplitude des modes devient plus grande et des structures multi-tourbillonnaires observées dans la partie précédente apparaissent :

Ainsi, entre 70 Hz et 150 Hz (fréquence f du signal électrique), l'écoulement est très semblable à celui produit par des oscillations axisymétriques de mode 2 (Fig. 129(a)).

Entre 150 Hz et 300 Hz, l'écoulement dans la goutte est très complexe : observé suivant la direction longitudinale, on retrouve la structure multi-tourbillonnaires produite par des oscillations axisymétriques de mode 4 (Fig. 107) mais observé suivant la direction transversale, nous n'observons que deux structures (Fig. 129(b)).

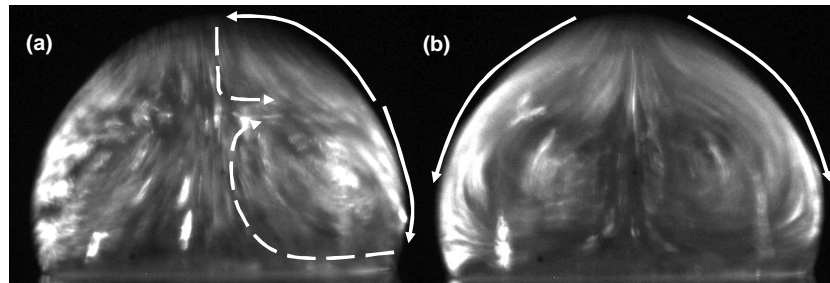


Fig. 129 Écoulements observés suivant la largeur des électrodes pour le mode 2 (a) et le mode 4 (b).

Il semble donc qu'il y ait une compétition entre le mode d'oscillation de la goutte et la géométrie des électrodes qui tend à orienter les oscillations suivant la longueur des électrodes :

A basse fréquence, on retrouve la structure observée et calculée dans la partie B correspondant au mode 2.

A haute fréquence, l'écoulement est imposé par le régime d'oscillations orientées. On retrouve alors la structure décrite dans la figure 119 et reproduite par le modèle numérique.

Pour un régime fréquentiel intermédiaire (200 Hz), l'écoulement est très complexe et nécessite une modélisation en trois dimensions particulièrement complexe à mettre en place.

Conclusion de la partie C :

L'étude de l'expérience à l'origine de cette thèse n'a pu réellement débiter qu'après que le système d'électromouillage ait pu être caractérisé d'un point de vue électrique puis que les oscillations et les écoulements aient été étudiés en configuration axisymétrique. L'expérience avec motif d'électrodes rectangulaires a alors été reproduite avec des améliorations apportées sur le montage expérimental tel que l'observation de profil et la stroboscopie mais aussi sur le protocole expérimental avec la lubrification de la puce. Cette étape qui pourrait paraître anodine a néanmoins permis d'améliorer considérablement les expériences d'écoulements. En effet, l'une des interrogations que nous avons au début de la thèse concernait le caractère intermittent et capricieux de nos expériences. L'écoulement pouvait ainsi s'interrompre ou plus radicalement ne pas se produire alors que les conditions expérimentales restaient apparemment inchangées. Le bénéfice de la lubrification de la surface de la puce n'était alors pas apprécié à sa juste valeur. Concernant l'électromouillage, le phénomène se produit de manière naturelle y compris sur des surfaces sèches. En revanche, comme nous l'avons évoqué (cf. p.146), les oscillations sont beaucoup plus sensibles au phénomène de piégeage de la ligne triple et peuvent être totalement inhibées par une surface sèche comportant des défauts. Si tel est le cas, l'écoulement ne se produit pas et le phénomène ne peut pas être maîtrisé. Contrairement au cas du motif circulaire où la configuration d'écoulement est instable au-delà du mode 6, on montre ici que la géométrie des électrodes permet d'imposer un régime d'oscillations et d'écoulement très reproductible sur une large bande fréquentielle (300 Hz à 10 kHz). Etant donné que les modes d'oscillations ne gouvernent pas la structure d'écoulement au-delà du mode 4, un modèle 2D basé uniquement sur le régime d'oscillations orientées suivant la longueur des électrodes a été réalisé et permet de reproduire une configuration d'écoulement proche de celle observée. Néanmoins, le modèle doit être amélioré dans l'avenir. Ces expériences montrent que les écoulements en électromouillage peuvent être maîtrisés en termes de reproductibilité (utilisation d'un film d'huile) et de structures (utilisation d'un motif d'électrodes adapté). Ces nouveaux résultats sont essentiels pour envisager des applications pratiques. Le chapitre suivant a pour ambition de fournir quelques pistes afin d'exploiter les phénomènes d'écoulements et d'oscillations en goutte.

Conclusion du chapitre 4 :

Ce chapitre a permis de confirmer le lien existant entre les oscillations de la goutte et les recirculations hydrodynamiques.

Dans la **partie A**, les oscillations de goutte ont été étudiées. Une approche similaire à celle menée par Oh *et al.*(2008) a été adaptée à notre configuration d'électrodes hémi-circulaires séparées de 3 μm et l'analyse expérimentale a été approfondie notamment grâce au logiciel d'analyse développé. Les observations montrent que dans notre configuration coplanaire, les oscillations sont axisymétriques et assez reproductibles si un film d'huile est déposé sur la surface de la puce pour la lubrifier. Un premier modèle basé sur l'instabilité linéaire d'une goutte permet de calculer ses différentes fréquences de résonance (Lamb) et sa vérification expérimentale donne des résultats satisfaisants. Un second modèle est ensuite détaillé pour prédire les oscillations induites par l'électromouillage mais les amplitudes prédites surestiment largement les valeurs expérimentales. Une approche non linéaire serait nécessaire pour améliorer les résultats concernant ce point. Cette partie a permis de définir les conditions expérimentales permettant de produire un phénomène d'oscillations de goutte suffisamment robuste et de mener une étude permettant de quantifier les régimes d'oscillations.

Dans la **partie B**, les écoulements produits par les oscillations de la goutte sont décrits et modélisés pour la même configuration que dans la partie A. Le phénomène de courant de dérive est introduit et l'adaptation d'un modèle existant permet de calculer des structures d'écoulement en goutte originales générées par les oscillations interfaciales. L'originalité du travail est accentuée par l'observation expérimentale de ces mêmes structures ; la comparaison modèle-expérience donne des résultats satisfaisants jusqu'au mode 6. Les lignes de courant observées sont identiques à celles prédites par le modèle fondé sur le courant de dérive tandis que la mesure de vitesse donne des résultats cohérents avec le calcul. Au-delà de 450 Hz néanmoins, les écoulements ne sont plus reproductibles : une rupture d'axisymétrie et des instabilités sont observées. L'écoulement n'est plus imposé par les modes d'oscillations et une structure récurrente semble apparaître montrant une configuration tourbillonnaire de type dipôle et dont l'orientation est aléatoire.

Au contraire, dans la **partie C**, une structure d'écoulement très reproductible est étudiée : il s'agit de la structure quadripolaire observée avant le lancement de la thèse et à l'origine de celle-ci. Pour cela, le motif d'électrodes coplanaires hémi-circulaires est remplacé par un motif d'électrodes coplanaires rectangulaires. On montre que le mouillage et les oscillations de la goutte sont favorisés suivant la direction longitudinale du motif d'électrodes. Cette caractéristique semble suffisante pour imposer la structure d'écoulement, indépendamment du mode d'oscillation de la goutte. En effet, un modèle numérique basé sur le courant de dérive engendré par une telle configuration d'oscillations permet de reproduire la structure quadripolaire. Ce cas de figure illustre un exemple où la géométrie des électrodes permet d'imposer une structure d'écoulement particulière.

Les différentes configurations mises en évidence dans ce chapitre sont résumées sur la figure ci-dessous (Fig. 130). Notre étude a été réalisée sur deux motifs d'électrodes différents, chacun d'eux produisant des régimes d'écoulement propres dont la compréhension semble

acquise ou au contraire doit faire l'objet de travaux supplémentaires (en rouge sur la figure 130).

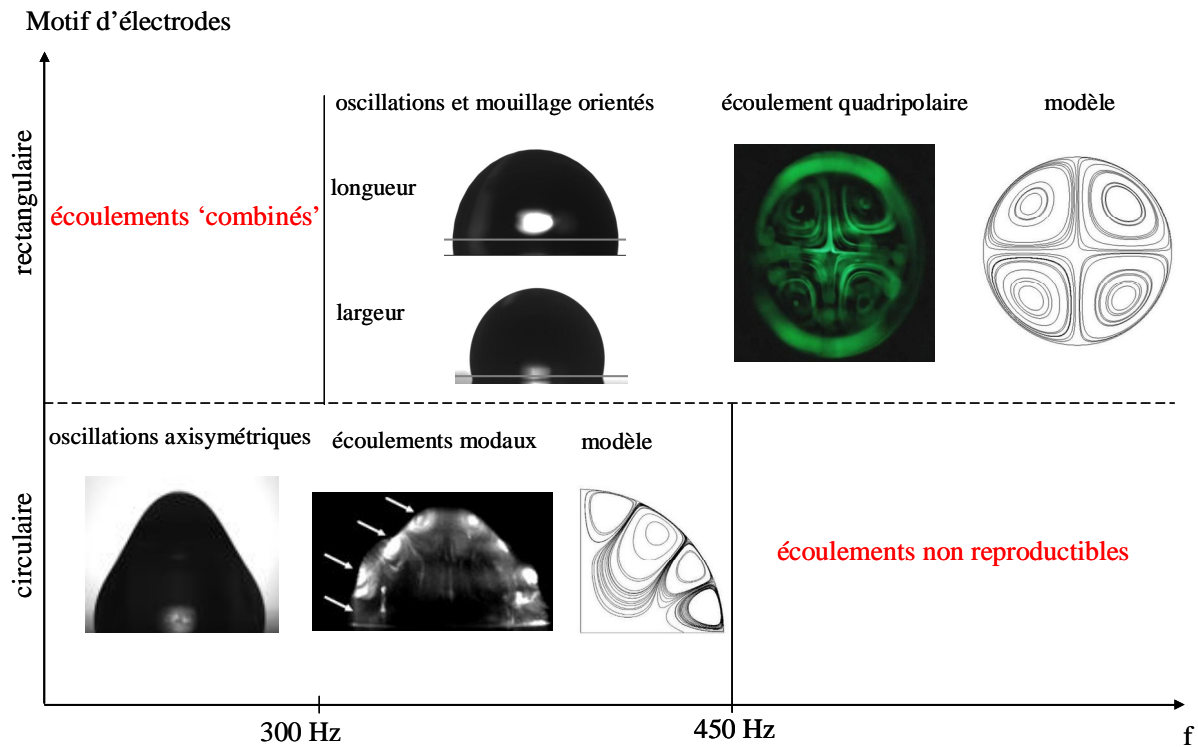


Fig. 130 Résumé des configurations d'écoulement mises en évidence et étudiées sous air.

CHAPITRE 5 : Applications potentielles

Les parties précédentes ont permis d'étudier le phénomène responsable des recirculations hydrodynamiques et de montrer le lien entre les oscillations de goutte et les recirculations hydrodynamiques. On étudie maintenant la possibilité de développer des applications pratiques dans le cadre des laboratoires sur puce. Pour le moment, l'exploitation de ces phénomènes semble difficile et aucune application n'a réellement émergé dans la littérature. Une présentation réalisée lors du dernier workshop d'électromouillage (Pohang, 2010) concernait la possibilité de créer un moyen de propulsion en faisant osciller une bulle d'air située à l'arrière d'un objet immergé et activée par électromouillage. Très récemment, les oscillations de gouttes activées par électromouillage ont été exploitées afin de caractériser la stabilité physico-chimique du substrat d'un laboratoire sur puce EWOD [Malk, Davoust et al. 2010]. Ce dernier point n'est pas évoqué dans ce chapitre, dévolu à l'utilisation des écoulements induits.

On étudie ici la possibilité d'exploiter les recirculations en goutte à des fins relatives aux protocoles biologiques. On se place dans un milieu liquide composé d'huile silicone. L'huile est quasi-systématiquement utilisée dans les applications liées aux laboratoires sur puce car elle permet une bonne reproductibilité des protocoles EWOD tout en évitant l'évaporation des échantillons.

*Dans la **partie A** les expériences sont réalisées sous huile. L'utilisation de billes de polymère permet de mettre en évidence un effet de concentration des traceurs et de déplacement des agglomérats par le biais d'un changement de fréquence. Ces deux caractéristiques notables de l'écoulement se produisent également lorsque des cellules sont introduites dans les gouttes. Le cas spécifique des cellules U373B est approfondi et la possibilité d'exploiter ces recirculations à des fins protocolaires est ensuite discutée.*

*Dans la **partie B** nous abandonnons la configuration ouverte pour vérifier si les phénomènes de recirculation en goutte apparaissent également en configuration fermée. Les configurations fermées sont beaucoup plus utilisées en pratique pour développer des protocoles car les fonctions fluidiques sont encore mieux maîtrisées. L'existence des recirculations hydrodynamiques en configuration fermée est mise en évidence. L'application pour le mélange en goutte ou la concentration de cellules est alors discutée. Ces dernières expériences ont été réalisées en collaboration avec Arnaud Rival, doctorant au sein du même laboratoire et dont le sujet de thèse concerne l'intégration d'un protocole biologique spécifique en puce.*

Partie A : Manipulation d'objets dans les gouttes

*L*ors de la phase de montage du banc expérimental (mise en place de la visualisation de profil, réalisation des logiciels de pilotage...), de nombreuses expériences étaient réalisées sous huile. L'huile permettait de prévenir l'évaporation des gouttes et de limiter le dépôt de poussières et d'impuretés en tous genres sur la surface des puces. Le motif utilisé pour ces phases de préparation est représenté sur la figure 131. Il s'agit d'un motif circulaire dont les deux électrodes sont séparées l'une de l'autre par un espace de 100 μm . Le choix de ce motif était avant tout stratégique : l'idée était alors de préserver les motifs les plus rares et les plus 'intéressants' d'un point de vue de la modélisation (espace inter-électrodes de 3 μm assurant l'axisymétrie de mouillage, électrodes rectangulaires permettant de reproduire les expériences initiales) jusqu'à ce que le banc de caractérisation soit entièrement opérationnel. C'est durant cette phase de réglages que nous avons mis en évidence des écoulements sous huile dont les caractéristiques nous ont poussés à produire un second lot de puce afin de mener davantage d'expériences notamment avec des cellules biologiques. Nous présentons ici ces expériences et discutons de leur potentiel applicatif.

1. Dispositif expérimental et protocole

L'expérience se déroule sous huile silicone (RT5, Paragon Scientific) dont la viscosité dynamique est de 4,9 mPa.s. Le motif utilisé comporte un espace inter-électrodes de 100 μm (Fig. 131). Nous réalisons les expériences avec les billes fluorescentes identiques à celles que nous avons utilisées dans les expériences précédentes, puis des expériences sont menées avec des cellules biologiques.

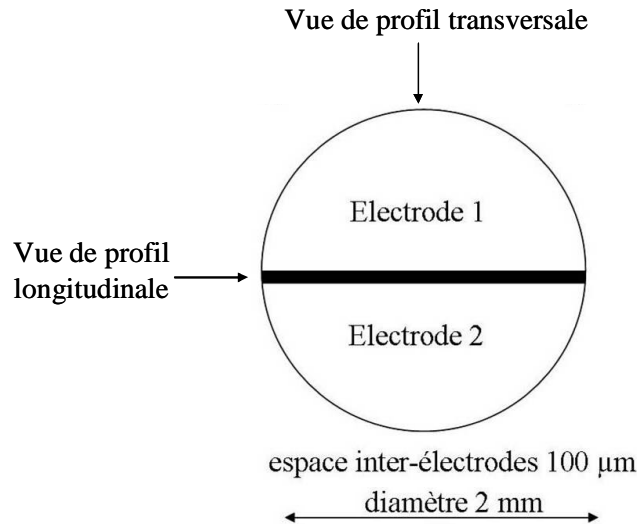


Fig. 131 Motif d'électrodes et vues de profils utilisés dans cette partie.

On s'intéresse alors aux oscillations et au brassage induit dans la goutte. Celle-ci est visualisée de dessus ainsi que de profil suivant les deux directions d'observation indiquées sur la figure 131.

2. Mise en évidence de recirculations sous huile avec des billes de polymère

En appliquant un signal électrique alternatif, on crée des oscillations et des recirculations hydrodynamiques au sein de la goutte. Les phénomènes étudiés jusqu'ici sous air se retrouvent donc également sous huile [Malk, Fouillet et al. 2010]. Toutefois, dans ce cas, les recirculations et les oscillations présentent des caractéristiques notables que nous présentons ici avec des billes puis avec des cellules dans les paragraphes qui suivent.

a. Oscillations et écoulements sous huile

La figure 132 représente différents profils d'oscillation d'une goutte de PBS contenant des billes et observée sous huile. Suivant la fréquence du signal électrique, la goutte oscille à différents modes mais en raison d'une dissipation visqueuse de la quantité de mouvement plus efficace dans l'huile, les amplitudes des modes sont très atténuées, ce qui rend l'étude du phénomène plus difficile que dans l'air. Quelques valeurs de fréquence de résonance sont

indiquées dans le tableau 20. La tension de surface étant plus faible que dans l'air (environ 28 mN/m), les fréquences de résonance surviennent plus tôt (résonance du mode 6 à 150 Hz environ contre 393 Hz sous air). Au delà du mode 10, les oscillations ne sont déjà plus visibles au sommet de la goutte et autour de 1 kHz, seule la ligne de contact oscille tandis que le reste de la goutte semble quasi-statique comme nous le verrons par la suite.

	Mode 6	Mode 6	Mode 8	Mode 10
f_0 (± 20 Hz)	90 Hz	150 Hz	240 Hz	300 Hz

Tab. 20 Fréquence de résonance de différents modes sous huile.

Une étude détaillée des oscillations sous huile serait nécessaire mais dans cette partie on se contente d'observer les phénomènes et d'évaluer leur potentiel applicatif.

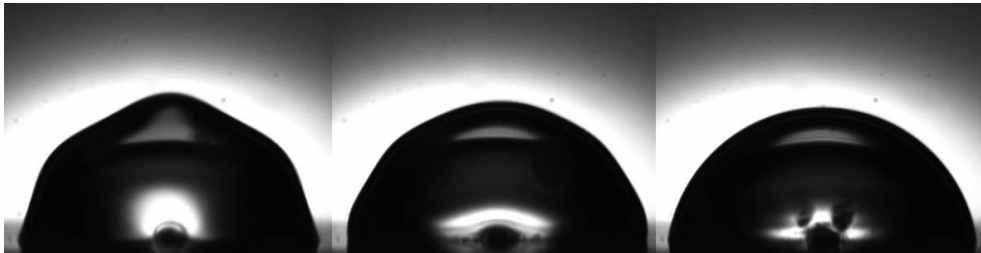


Fig. 132 Profils de goutte sous huile à 150 Hz, 300 Hz et 3000 Hz de gauche à droite.

En observant les billes de densité 1,05, très voisine de celle du PBS, on se rend compte que certaines sédimentent tandis que d'autres viennent se loger à l'interface entre le PBS et l'huile. Une structure surfacique quadripolaire assez semblable à celle mise en évidence précédemment (chap. 4/partie C) est alors observée mais les vitesses d'écoulement sont beaucoup plus faibles (quelques centaines de $\mu\text{m/s}$ à 1 mm/s). Ces structures sont représentées à 150 Hz sur la figure 133. Elles sont parfaitement symétriques et centrées sur l'espace inter-électrodes.

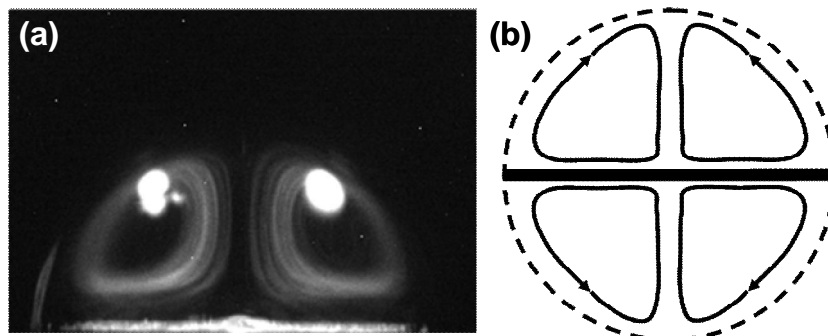


Fig. 133 (a) Vue de profil de l'écoulement à 150 Hz (suivant la direction longitudinale) et schéma des lignes de courant vue de dessus (b).

b. Concentration et déplacement des agglomérats.

Deux caractéristiques notables du comportement des billes sont alors mises en évidence :

i) En augmentant la fréquence du signal électrique, les tourbillons deviennent plus petits et les traceurs situés en surface convergent vers le centre de chacun des vortex. Une fois qu'elles ont convergées, les billes restent agglomérées jusqu'à la fin de l'expérience. On obtient donc un effet de concentration des billes au sein de structures tourbillonnaires.

ii) A cet effet de concentration, s'ajoute un déplacement des vortex à la surface de la goutte induit par le changement de fréquence du signal électrique. Ainsi, pour les fréquences les plus basses, les agglomérats se positionnent à mi-hauteur de la goutte tandis que lorsque la fréquence est augmentée, les vortex se rapprochent peu à peu du plan de mouillage et convergent vers l'espace inter-électrodes qui agit comme un puits de collecte. Le positionnement des structures tourbillonnaires à la surface de la goutte est totalement réversible et reproductible et la fréquence du signal électrique est l'unique paramètre de contrôle.

Ces deux effets remarquables sont illustrés sur la figure 134.

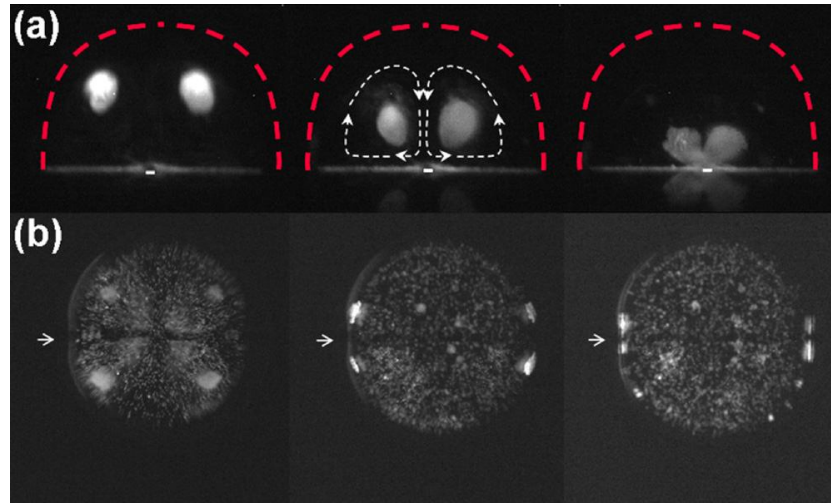


Fig. 134 Localisation des agglomérats pour des fréquences de 150, 300 et 3000 Hz de gauche à droite respectivement. (a) Vue de profil longitudinale (le trait blanc représente l'espace inter-électrodes). (b) vue de dessus. Les flèches indiquent la direction d'observation de la vue de profil. Image tirée de [Malk, Fouillet et al. 2010].

Ainsi, les écoulements et les oscillations se produisent également sous huile. A la différence des écoulements sous air, un effet de concentration des traceurs est obtenu à fréquence élevée (1000 Hz) et un déplacement des agglomérats à la surface de la goutte est alors possible en ajustant la fréquence du signal électrique. Une convergence des structures vers l'espace inter-électrodes est observée lorsque la fréquence est augmentée. La suite de cette partie permet de vérifier si des écoulements se produisent également dans des gouttes contenant du matériel biologique.

3. Recirculations en goutte contenant des cellules biologiques

Les expériences ont été réalisées avec trois types de cellules couramment utilisés dans le laboratoire : des globules rouges, des globules blancs et des cellules U373B. Les caractéristiques de ces cellules sont résumées sur le tableau 21.

Les globules rouges sont des cellules sanguines permettant le transport de l'oxygène dans le corps. Les globules blancs sont d'autres types de cellules sanguines et sont impliqués dans les réactions immunitaires de l'organisme. En raison de leur apparence transparente, ils ont été marqués en fluorescence pour faciliter leur observation. Enfin les cellules U373B sont des

cellules abondamment cultivées dans le laboratoire. Contrairement aux globules, elles ont un caractère adhérent ce qui signifie qu'elles ont tendance à se coller aux surfaces solides. Ces cellules sont des astrocytes⁶ modifiés servant de témoin pour identifier la cyto-toxicité de certains composants. Elles sont contenues dans un milieu de culture comportant 10% de sérum de vœu fœtal. Les concentrations en cellules correspondent à des valeurs arbitraires obtenues lors des phases de préparation des échantillons.

	Globule rouge	Globule blanc	U373B
Taille	2-8 μm	10-30 μm	20-40 μm
Forme, propriétés	disque,	sphère	sphère, cellules adhérentes
Concentration (cellules/ μl)	$5,5 \cdot 10^3$	$0,5 \cdot 10^3$ - $1 \cdot 10^3$	$1,5 \cdot 10^3$
Milieu liquide	PBS	PBS	Milieu de culture

Tab. 21 Informations relatives aux différents types de cellules testés lors des expériences.

Une goutte d'un volume de 1,5 μl est déposée sur la puce ; afin de faciliter son dépôt, les électrodes sont au préalable activées évitant ainsi que la goutte ne reste arrimée au bout du cône de la pipette.

a. Concentration et manipulation de cellules

L'effet des recirculations sur les gouttes contenant les cellules est représenté sur la figure 135 :

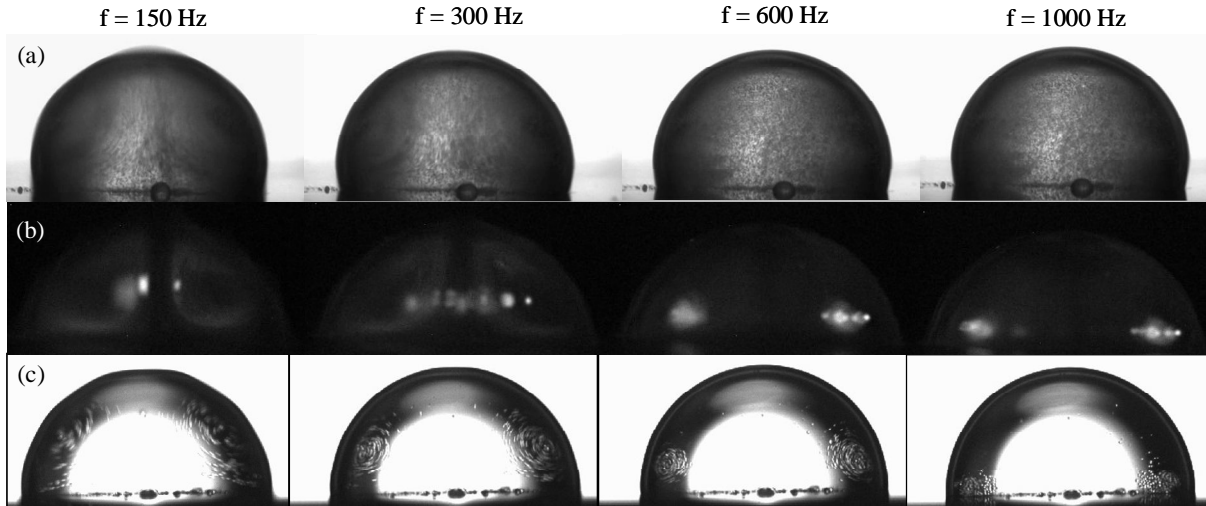


Fig. 135 Effet des recirculations en goutte sur différents types de cellules ; (a) globules rouges, (b) globules blancs, (c) cellules U373B. Vues de profil suivant la direction longitudinale.

On observe dans les trois cas un effet de concentration plus ou moins marqué suivant le type de cellules. Ainsi, pour les globules rouges, l'effet de concentration n'est pas très visible et les cellules sont dispersées dans tout le volume de la goutte. Au contraire, pour les globules blancs et les cellules U373B, la constitution d'agglomérats est très nette. Les cellules qui étaient à l'état initial uniformément réparties dans toute la goutte convergent au centre de structures tourbillonnaires. Le changement de fréquence induit alors un déplacement des amas

⁶ Cellules gliales représentant environ 50% du volume cérébral.

dans le même sens que celui observé avec les billes : à basse fréquence, les agglomérats se situent à mi-hauteur et se rapprochent du plan de mouillage lorsque la fréquence augmente. Il est à noter qu'ici contrairement au cas précédent, les cellules se déplacent verticalement lorsque la fréquence est augmentée et ne convergent donc pas vers l'espace inter-électrodes. La raison de cette différence de comportement est donnée plus loin.

Nous poursuivons l'observation des recirculations en goutte contenant des cellules biologiques en approfondissant le cas des cellules U373B. Pour ces cellules, l'effet de concentration est beaucoup plus marqué que pour les globules rouges. De plus, leur manipulation n'est pas soumise à des contraintes de sécurité particulières contrairement aux globules blancs qui sont marqués en fluorescence avec des molécules intercalantes.

b. Cas des cellules U373B

L'effet de l'écoulement sur le comportement des cellules U373B est représenté sur les figures suivantes :

Concentration des cellules à l'intérieur des structures

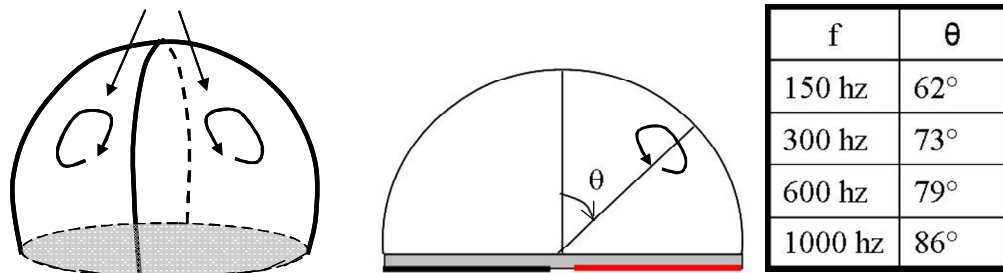


Fig. 136 Représentation schématique de la concentration des cellules U373B dans la goutte. Plus la fréquence augmente et plus les agglomérats se rapprochent du plan de mouillage.

L'observation de la goutte suivant les vues de dessus et les vues de profil (Fig. 135 et Fig. 137) permettent d'apporter deux éléments d'analyse supplémentaires qui mettent en évidence des différences notables avec le cas des billes présenté précédemment. Ainsi :

- La vue de profil suivant la direction transversale montre que les structures tourbillonnaires observées dans le cas de cellules sont au nombre de 2.
- La confrontation de la vue de dessus et de la vue longitudinale permet de déduire que les amas de cellules ne se déplacent pas à la surface de la goutte mais à l'intérieur de la goutte. Les cellules se concentrent donc en volume et non pas à la surface.

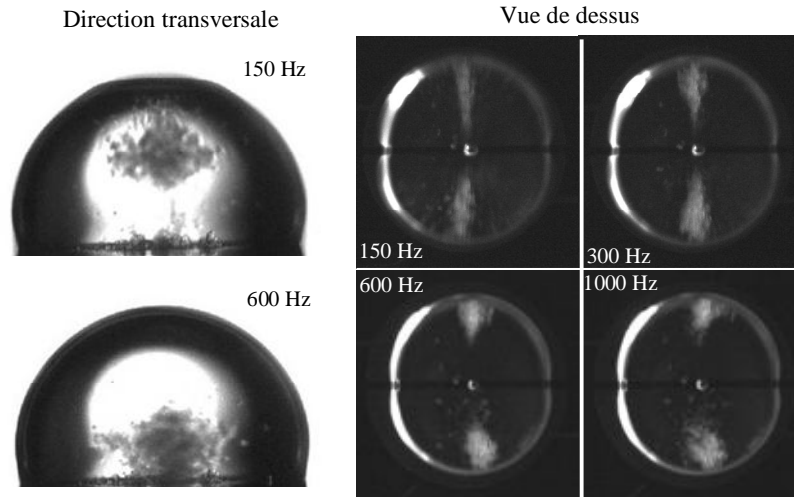


Fig. 137 Visualisation de profil transversale et de dessus de la goutte contenant des cellules.

On a donc un comportement sur les cellules qui est assez différent de celui des billes : celles-ci se regroupaient en effet en 4 amas localisés à la surface de la goutte alors que les cellules se regroupent en volume pour former 2 amas seulement. Avant de discuter d'une éventuelle application pour les laboratoires sur puces, nous donnons quelques éléments d'explication relatifs à ces observations sans toutefois répondre à toutes les interrogations suscitées par le phénomène d'écoulement sous huile.

4. Eléments d'explication

L'observation des écoulements sous huile montre :

- une structure d'écoulement non axisymétrique,
- un déplacement des agglomérats en fonction de la fréquence du signal électrique,
- une convergence des amas vers l'espace inter-électrodes dans le cas des billes.

Pour comprendre ces caractéristiques, il convient d'analyser le régime d'oscillations et de mouillage de la goutte.

a. Espace inter-électrodes et rupture d'axisymétrie

Dans la partie précédente, nous avons vu que des électrodes rectangulaires imposaient à la goutte une forme allongée et un régime d'oscillations orientées suivant la longueur des électrodes, ce qui suffisait à rompre l'axisymétrie hydrodynamique et à imposer une structure quadripolaire. On observe ici que la configuration utilisée (espace inter-électrodes de 100 μm et huile silicone) permet également de rompre l'axisymétrie d'écoulement. Ceci s'explique par la forme particulière adoptée par la goutte et représentée sur la figure 138.

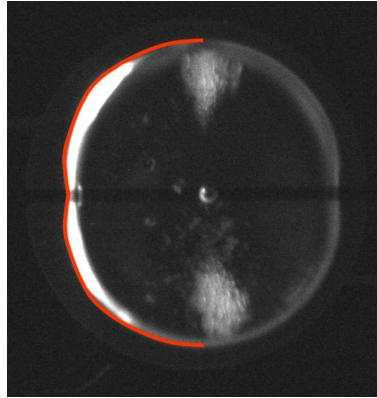


Fig. 138 Vue de dessus de la goutte contenant les cellules. Le contour en rouge permet de mettre en évidence la rupture d'axisymétrie de la goutte.

Vue de dessus, la forme de la goutte n'est pas circulaire mais légèrement pincée à l'emplacement de l'espace inter-électrodes. Cette dissymétrie de mouillage se mesure également sur les oscillations de la ligne triple et de l'angle de contact de la goutte (Fig. 139).

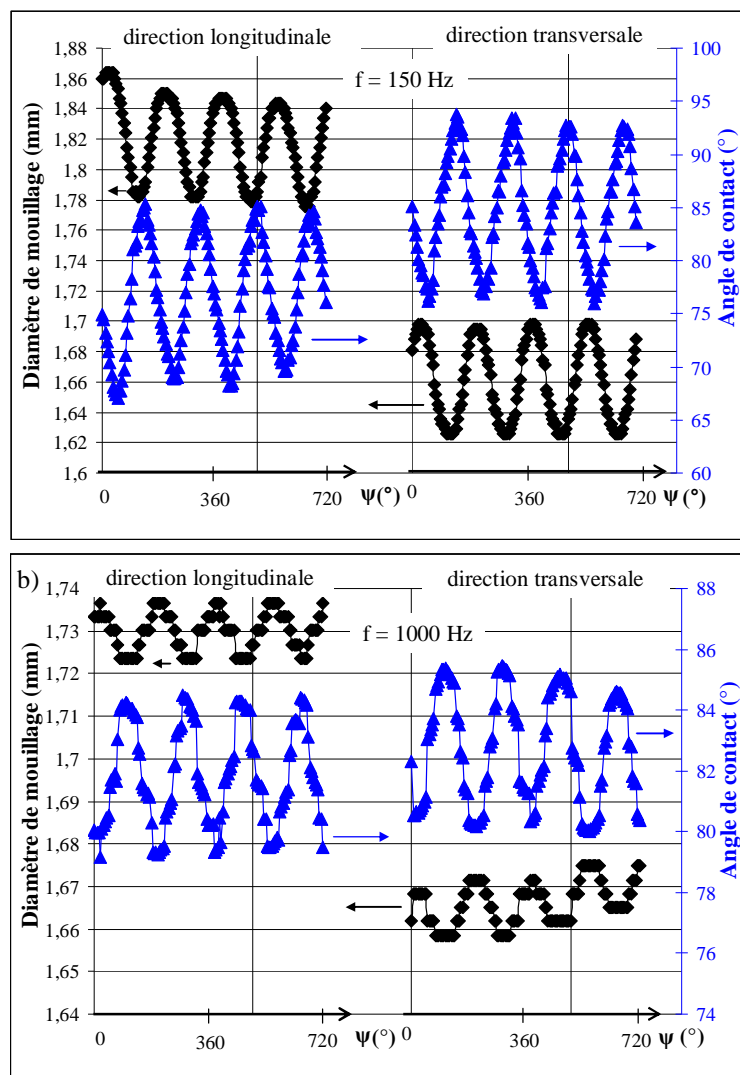


Fig. 139 Oscillations de la ligne de contact (courbes noires) et de l'angle de mouillage (courbes bleues) suivant les deux directions d'observation et pour des fréquences d'actuation de 150 Hz (a) et 1000 Hz (b).

On vérifie sur ces courbes que plus la goutte s'étale et plus l'angle de contact diminue et que les extremas de chacune des deux courbes sont atteints en même temps, signifiant que les deux grandeurs (déplacement de la ligne de contact et angle de contact) sont en phase.

L'amplitude d'oscillation de la ligne de contact est à peu près identique suivant les deux directions d'observation ($40\ \mu\text{m}$ d'amplitude à $150\ \text{Hz}$ et $5\ \mu\text{m}$ à $1000\ \text{Hz}$) mais le rayon moyen autour duquel oscille la goutte est plus grand lorsque l'on observe la goutte suivant la direction longitudinale (espace inter-électrodes orthogonal au plan de l'image) que suivant la direction transversale. La différence est d'environ $80\ \mu\text{m}$ à $150\ \text{Hz}$ et de 30 à $35\ \mu\text{m}$ à $1000\ \text{Hz}$. La rupture d'axisymétrie se répercute également sur l'angle de contact de la goutte : l'angle est plus faible lorsque la goutte est observée suivant la direction longitudinale tandis que les amplitudes d'oscillation sont à peu près identiques (15° et 5° d'amplitude à $150\ \text{Hz}$ et $1000\ \text{Hz}$ respectivement).

Cette rupture de symétrie s'explique par une diminution locale de la contrainte d'électromouillage induite par l'espace inter-électrodes. Dans les parties précédentes, l'espace inter-électrodes était si faible ($3\ \mu\text{m}$) que son influence était négligeable ce qui assurait un mouillage et des oscillations axisymétriques. Ici, sa valeur est beaucoup plus élevée ($100\ \mu\text{m}$). De plus, son influence est plus grande en raison d'une tension de surface sous huile, plus faible que dans l'air ($73\ \text{mN/m}$), signifiant que la goutte est plus facile à déformer.

Ainsi, la présence d'un écoulement non axisymétrique dans cette configuration s'explique bien par le caractère non axisymétrique du mouillage qui induit des oscillations anisotropes de la goutte.

b. Modes d'oscillations et position des agglomérats

Sous huile, la goutte oscille avec un régime très amorti. Lorsque la fréquence augmente, les oscillations se concentrent près de la ligne de contact, lieu d'application de la contrainte d'électromouillage, et se dissipent au fur et à mesure que l'on s'éloigne du plan de mouillage.

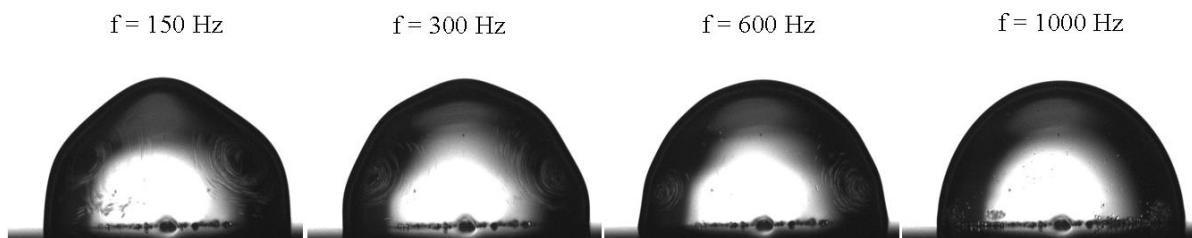


Fig. 140 Oscillations de la goutte contenant des cellules sous huile.

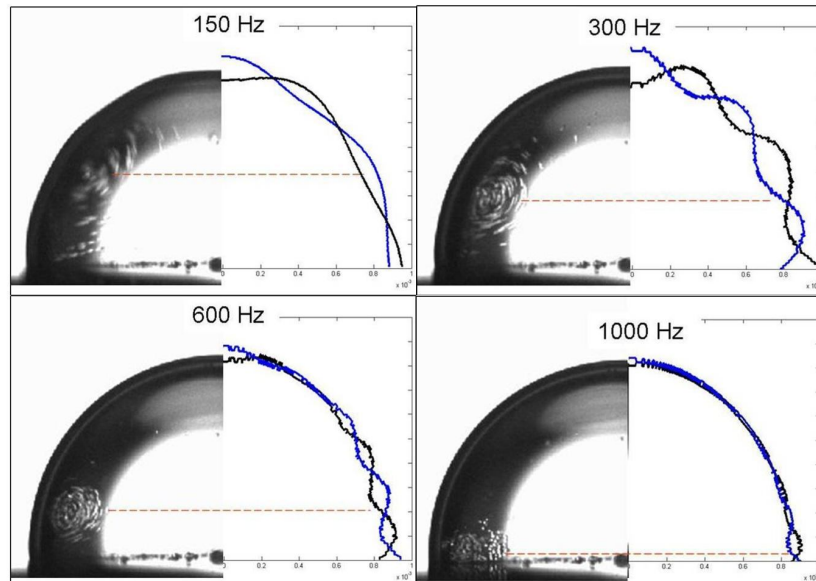


Fig. 141 Correspondance entre la position des agglomérats de cellules U373B et les oscillations de la goutte. Sur chaque image, la partie gauche montrant la position des cellules est prise en lumière continue. La partie gauche est issue de l'analyse d'images prises avec l'éclairage stroboscopique. A partir de 300 Hz, l'amplitude des oscillations est amplifiée d'un facteur 5 afin de mieux les visualiser.

On montre ainsi que le positionnement des amas est corrélé au mode d'oscillation de la goutte. En effet, lorsque la goutte oscille de manière ample sur toute sa surface, les amas de cellules se positionnent à mi-hauteur. Au contraire, pour des oscillations confinées près de la ligne de contact, les amas se déplacent et se stabilisent au voisinage du plan de mouillage. Sur la figure 141, il semble que les amas se positionnent au niveau du deuxième nœud d'oscillations compté en partant de la ligne de contact (300 Hz et 600 Hz). Néanmoins, cette observation est mise à défaut à basse fréquence (150 Hz) et à haute fréquence (1000 Hz).

La reproductibilité du positionnement des amas est donc directement dictée par le phénomène d'oscillations. Le changement de mode d'oscillation étant très robuste, les structures peuvent être déplacées de manière précise et réversible en réglant la fréquence du signal électrique.

c. Convergence des agglomérats surfaciques vers l'espace inter-électrodes

Dans le cas où des billes sont utilisées, on observe, lorsque la fréquence est augmentée, un déplacement des agglomérats vers l'espace inter-électrodes. En effet, les agglomérats étant situés à la surface de la goutte, leur déplacement est affecté par la déformation interfaciale de la goutte induite par l'espace inter-électrodes (Fig. 134 (b)). Au contraire, les amas de cellules étant situés en volume, leur déplacement n'est pas affecté par la déformation surfacique de la goutte (Fig. 138). L'espace inter-électrodes n'agit plus comme un puits de collecte et les amas de cellules se déplacent verticalement sous l'effet du changement de mode d'oscillation.

d. Points d'étude à approfondir

Des études supplémentaires sont nécessaires pour déterminer les spécificités de l'écoulement sous huile. Basé sur l'analyse du régime d'oscillations (Fig. 139), on s'attend à ce que 4 cellules de convection soient créées au sein de la goutte par un mécanisme semblable à celui

décrit précédemment (Fig. 126) à l'exception qu'ici, la rupture d'axisymétrie est engendrée par un espace inter-électrodes trop important et non pas par la géométrie rectangulaire des électrodes. Avec des billes, la structure quadripolaire semble être observée en surface mais doit être confirmée en volume. En effet, la répartition des billes dans la goutte (les billes se logent à la surface de la goutte) ne permet pas de visualiser clairement l'écoulement en volume.

Lorsque des cellules sont utilisées, deux amas volumiques sont créés par l'écoulement. La raison pour laquelle les cellules se concentrent en volume et non pas en surface est probablement liée à leur densité massique qui, bien qu'elle n'ait pas été mesurée doit être supérieure à celle des billes (1,05). Des études supplémentaires doivent donc être poursuivies en particulier afin de comprendre pourquoi seulement 2 agglomérats se forment et non pas 4. Par ailleurs, on peut se demander pourquoi l'effet de concentration existe sous huile et pas dans l'air ou encore pourquoi celui-ci est moins net avec des globules rouges qu'avec des globules blancs ou des cellules U373B. L'influence de la tension de surface des solutions, de la concentration et de la forme des cellules doit faire l'objet d'études approfondies par la suite.

Nous nous contenterons de ces éléments d'explication partiels et discutons maintenant de la possibilité d'exploiter ce phénomène à des fins protocolaires.

5. Discussion sur l'exploitation des recirculations en configuration ouverte

L'exploitation pratique des recirculations en goutte ne représentait pas l'objectif prioritaire de cette thèse. Néanmoins, l'étude du phénomène d'écoulement devait permettre d'évaluer son potentiel applicatif. L'une des applications envisagée lors des expériences d'avant thèse concernait la possibilité de créer un seul et unique tourbillon dans la goutte capable de séparer des entités biologiques poly-disperses par centrifugation. Néanmoins, aucune des configurations présentées ici n'a permis de créer un seul vortex en goutte. Des études supplémentaires portant sur le niveau d'activation des puces et les configurations d'électrodes sont néanmoins nécessaires avant d'exclure définitivement la possibilité de centrifuger des échantillons en goutte. Une configuration d'écoulement quadripolaire optimisée pourrait à défaut permettre de créer quatre cellules de centrifugation.

Contre toute attente, nous avons observé que les écoulements sous huile pouvaient peut-être être utilisés pour développer la fonction contraire de celle initialement envisagée (centrifugation). En effet, les écoulements sous huile font apparaître deux caractéristiques intéressantes : un effet de concentration des objets est observé ainsi qu'un effet de déplacement réversible et reproductible des agglomérats en fonction de la fréquence du signal électrique. On pourrait alors envisager d'exploiter ce phénomène pour concentrer ou manipuler des entités biologiques au sein des gouttes. L'une des applications pourrait être de favoriser l'interaction de deux entités au sein de structures. Par exemple, l'adsorption de molécules d'ADN sur des billes fonctionnalisées pourrait être facilitée si l'une et l'autre des entités étaient concentrées au sein des mêmes structures.

Cependant, quelle que soit la fonction visée (centrifugation ou concentration et manipulation) la problématique de savoir comment récupérer les agglomérats à l'intérieur (ou à la surface)

de la goutte se pose. Ainsi, ces fonctions ne peuvent être exploitées que si une méthode d'extraction des particules est disponible. En configuration fermée, un aimant peut être utilisé pour extraire des billes magnétiques fonctionnalisées ; la présence du capot empêche le contact entre les billes et l'aimant. En configuration ouverte, cette solution ne peut donc pas être retenue car elle deviendrait intrusive. Une alternative consisterait à utiliser l'électromouillage pour couper la goutte en 2 parties en espérant que les agglomérats (dans le cas d'une concentration) ne se dispersent pas. Le problème est qu'en configuration coplanaire ouverte, le déplacement de gouttes est possible en utilisant des matrices d'électrodes [Park, Lee et al.; Abdelgawad, Freire et al. 2008] mais leur séparation est beaucoup plus difficile à réaliser [Abdelgawad, Park et al. 2009]. A l'état actuel la configuration ouverte en coplanaire n'offre donc que peu de possibilités.

Une piste d'exploitation intéressante à explorer concerne l'écoulement créé par les oscillations de goutte dans la phase ambiante. Des objets dispersés dans le milieu ambiant pourraient alors être concentrés ou manipulés grâce aux recirculations induites à l'extérieur de la goutte. Des travaux réalisés par Chung *et al.* [Chung and Cho 2008; Chung and Cho 2009] montrent que des cellules d'œufs de poisson ou des particules sphériques viennent se concentrer au sommet d'une bulle en vibration dans un liquide. Le dispositif permet alors de capturer les objets, de les déplacer en déplaçant la bulle par électromouillage puis de les relâcher. Bien que le déplacement de la goutte se fasse par électromouillage, les oscillations sont quant à elles induites par un actuateur piézo-électrique situé sous la puce. On peut penser que l'utilisation d'un signal alternatif et d'une matrice d'électrodes coplanaires permettrait de générer des oscillations et de déplacer la bulle sans avoir recours à l'actuateur piézo-électrique et donc de simplifier le dispositif.

Ainsi, en configuration ouverte, la piste d'exploitation la plus prometteuse concernerait les écoulements extérieurs à la bulle. Voyons ce qu'il en est lorsque l'on passe en configuration fermée très largement utilisée en pratique.

Partie B : Brassage en configuration fermée

Jusqu'ici toutes les études ont été réalisées avec des configurations ouvertes. Celles-ci permettent d'observer le profil de la goutte ainsi que les écoulements induits en volume. Néanmoins, les configurations ouvertes sont très peu utilisées en pratique en comparaison avec les configurations fermées. Un exemple concerne le laboratoire sur puce développé dans le cadre du projet Smartdrop. Dans ce laboratoire sur puce développé pour intégrer des protocoles biologiques, la puce est recouverte d'un capot relié à la masse et permettant d'améliorer l'efficacité des fonctions fluidiques. L'une des questions que l'on se posait aux débuts de cette thèse était de savoir si le phénomène d'écoulement était propre aux configurations ouvertes où s'il se produisait également en configuration fermée. La réponse à cette question se trouve dans cette partie consacrée au brassage en goutte dans la puce utilisée par le projet Smartdrop. Nous mettons d'abord en évidence le phénomène d'écoulement en goutte dans cette configuration, puis nous montrons qu'il peut être exploité afin de favoriser le mélange, étape indispensable à la réussite des protocoles en puce.

1. Puce d'électromouillage en configuration fermée

a. Présentation du dispositif expérimental

Nous réalisons les expériences avec des puces utilisées dans le cadre du projet Smartdrop (Fig. 142). Ces puces sont technologiquement identiques à celles que nous avons utilisées (mêmes couches de nitrure et de SiOC, mêmes épaisseurs...) mais sont en plus recouvertes d'un capot en verre reposant sur des murs d'ordyl (résine photosensible) d'une hauteur de 100 μm . Le capot comporte une fine couche conductrice transparente composée d'oxyde d'indium-étain (en anglais ITO pour Indium Tin Oxide) d'une épaisseur de 30 nm permettant de le relier à la masse et une couche de SiOC (250 nm d'épaisseur) pour le rendre hydrophobe. Le collage du capot sur la puce est réalisé par sérigraphie et des ouvertures permettent d'assurer la connectique fluide avec l'extérieur. Elle est finalement remplie intégralement d'huile silicone (RT5, Paragon Scientific) et est alors prête à être utilisée.

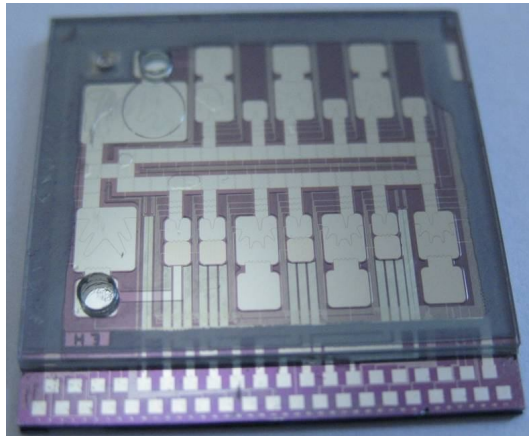


Fig. 142 Puce utilisée dans le cadre du projet Smartdrop.

b. Configuration d'étude et protocole

La puce utilisée comporte au centre des électrodes de taille 800 x 800 μm servant à acheminer les échantillons biologiques jusqu'aux différentes chambres de réaction. Ces électrodes sont séparées d'une distance de 10 μm . Nous utilisons deux de ces électrodes pour réaliser nos expériences. Une goutte de 64 nl composée de PBS, de Tween 20 (0,005%) et de billes de polymère (Intertek 10 μm) est introduite et acheminée au centre de la puce. L'utilisation du surfactant permet de faciliter l'introduction de la goutte dans la puce à travers un des trous du capot. Les deux électrodes coplanaires sont alors activées au même potentiel tandis que le capot est relié à la masse (Fig. 143). Dans cette configuration d'étude, l'épaisseur du capot est si faible (250 nm, pas de couche de nitrure) que la goutte peut être considérée comme étant à la masse. Cette configuration est donc une combinaison de la configuration à électrode plongeante (Fig. 15) et de la configuration ouverte à électrodes coplanaires (Fig. 16(b)). Une caméra (Orca-ER, Hamamatsu) située au dessus de la puce permet de prendre une série d'images à intervalle de temps régulier fixé à 0,1 secondes. Le logiciel de micro-*PIV* a permis d'estimer la vitesse moyenne d'écoulement dans la goutte. Ce logiciel est adapté pour cette configuration d'étude où l'interface plane de la goutte n'induit aucune déformation de vitesse et où les écoulements sont lents.

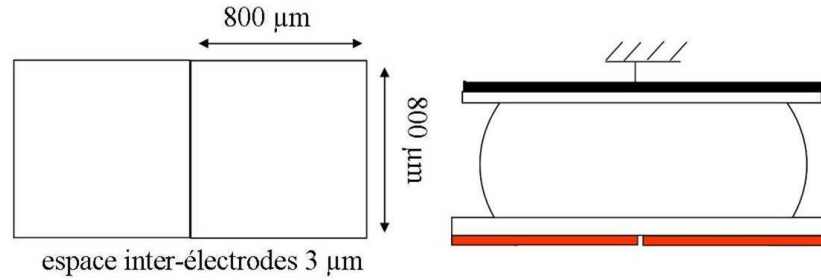


Fig. 143 Schéma de la configuration d'électrodes (à gauche) et activation électrique utilisée lors des expériences en configuration fermée.

2. Écoulement hydrodynamique en configuration fermée

a. Mise en évidence des écoulements en configuration fermée

Au contraire, l'application d'un signal électrique a pour conséquence d'étaler la goutte qui chevauche alors de manière identique les deux électrodes coplanaires. On observe que lorsque le signal électrique est continu (Fig. 144 (a)), les billes sont immobiles dans la goutte tandis que lorsque le signal est alternatif, elles se déplacent et décrivent une structure d'écoulement très semblables à celle observée dans la partie précédente (Fig. 119) : deux paires de tourbillons contrarotatifs apparaissent et une configuration quadripolaire parfaitement centrée est visualisée (Fig. 144 (b)).

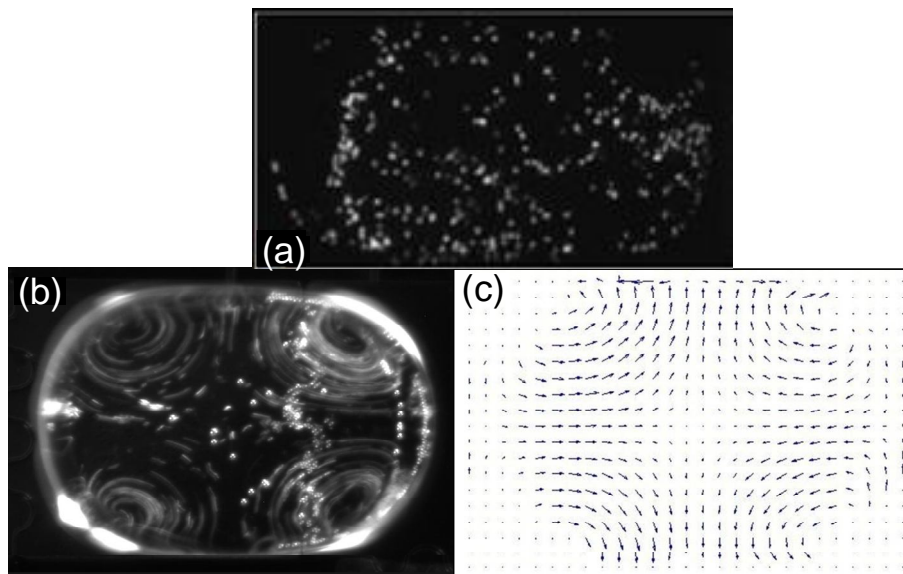


Fig. 144 Goutte vue de dessus en configuration fermée activée par un signal électrique continu (48 V) (a) ; écoulement quadripolaire se produisant avec un signal électrique alternatif (48 V_{eff}, 70 Hz) (b) ; champ de vitesse associé à l'écoulement quadripolaire tel que calculé par le logiciel de µPIV (c). La disposition des électrodes est telle que représentée sur la figure (Fig. 143).

b. Influence de la fréquence et de l'amplitude du signal électrique

Alors qu'en configuration ouverte, la vitesse moyenne d'écoulement est de quelques mm/s (Fig. 105), en configuration fermée, les écoulements sont beaucoup plus lents comme le montre la courbe représentée sur la figure 145 :

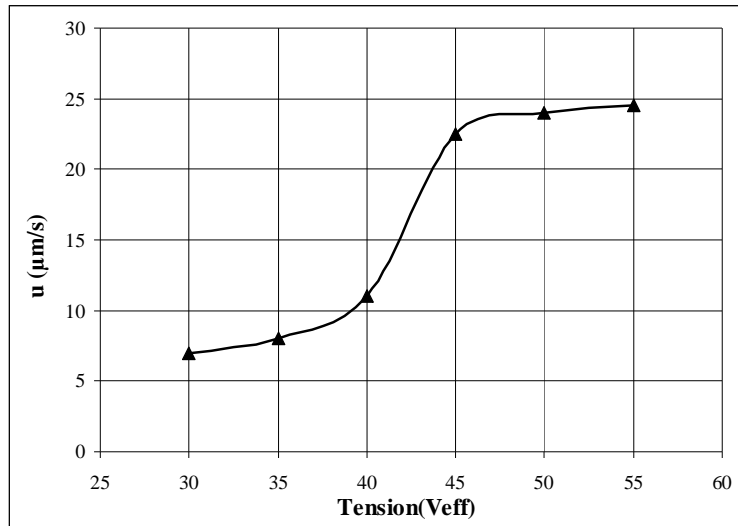


Fig. 145 Vitesse moyenne d'écoulement en configuration quadripolaire.

La vitesse moyenne d'écoulement ne dépasse pas les 25 µm/s y compris à une tension supérieure à 55 V_{eff}. On rappelle que dans cette configuration, l'application d'une tension de 55 V_{eff} est équivalente à l'application d'une tension de 110 V_{eff} en configuration coplanaire ouverte en raison du potentiel électrique de la goutte imposé à la masse. On observe que la vitesse augmente rapidement avec la tension entre 30 et 45 V_{eff} puis se stabilise autour d'une valeur seuil au-delà de 45 V_{eff}. Ce phénomène pourrait être dû à une saturation de la vitesse d'écoulement à tension électrique élevée. En configuration ouverte, nous n'avons pas constaté de saturation des vitesses dans notre configuration d'électrodes coplanaires et dans la gamme de tension électrique étudiée (jusqu'à 91 V_{eff} soit l'équivalent de 45,5 V_{eff} dans la configuration actuelle). Néanmoins, la saturation de la vitesse est évoquée dans l'étude de Ko *et al.* (2009). Dans cette étude en configuration ouverte, l'écoulement étudié correspond à l'écoulement à l'extérieur d'une bulle en oscillation. La saturation est observée à partir d'une tension de 80 V_{eff} et pour des vitesses de l'ordre de 7 mm/s. Ici, la saturation est observée bien avant pour une vitesse d'écoulement plus faible mais l'expérience est menée en milieu confiné avec des conditions expérimentales bien différentes (huile, puce, surfactant...).

La fréquence du signal électrique a également une influence sur l'écoulement : entre 30 Hz et 150 Hz, la structure quadripolaire est stable et les vitesses sont relativement constantes mais au-delà de 150 Hz, les quatre tourbillons disparaissent peu à peu et laissent place à des recirculations plus petites, plus nombreuses et localisées près des contours de la goutte tandis qu'au centre les billes sédimentent en l'absence d'écoulement. Enfin, on vérifie qu'en signal continu, aucune recirculation n'apparaît.

c. Interprétations et discussion

L'inconvénient majeur de la configuration fermée est que l'on ne peut pas visualiser les oscillations de la goutte car l'observation de profil n'est pas possible. De plus la stroboscopie n'a pas pu être mise en place dans cette configuration. Néanmoins, des observations réalisées à la binoculaire à faible fréquence (30 à 60 Hz) permettent de distinguer des oscillations du contour de la goutte mais le dispositif les rend difficilement quantifiables. Ces oscillations devraient être orientées s'il l'on en juge par la forme de la goutte et par la structure d'écoulement observée. En effet, l'observation (Fig. 144) montre que la goutte adopte une forme allongée (la goutte a une largeur de 800 μm et une longueur de 1125 μm) imposée par la géométrie des électrodes (chacune d'elle mesurant 800 μm de côté.). Suivant la largeur, la goutte ne peut osciller que très faiblement car l'électrode est entièrement recouverte alors que suivant la longueur, la goutte a la possibilité d'osciller de manière beaucoup plus importante. On remarque qu'avec la présence du capot, la goutte est aplatie et l'explication basée sur des considérations 2-D dans la partie C du chapitre 4 se justifie totalement dans cette configuration. Ainsi, on retrouve un mécanisme d'écoulement identique à celui qui a été présenté avec un motif d'électrodes rectangulaires. Le courant de dérive produit par les oscillations orientées de la goutte permet alors d'expliquer la configuration quadripolaire (Fig. 128). Néanmoins, les vitesses moyennes d'écoulement et les fréquences d'apparition des structures quadripolaires sont plus petites qu'en configuration ouverte. Ceci s'explique par la présence d'huile silicone et du confinement de la goutte sur une hauteur de 100 μm . Lorsque la fréquence augmente les oscillations diminuent en amplitude et l'écoulement s'amenuise.

Ainsi, en configuration fermée, l'effet de concentration ne se produit pas de manière aussi spectaculaire qu'en configuration ouverte (Fig. 134 et Fig. 135). On obtient tout au mieux de petits agglomérats localisés près des contours de la goutte à haute fréquence (3 kHz) mais l'essentiel des billes sédimente au centre de la goutte. On ne peut donc pas à l'état actuel exploiter de manière pratique ces recirculations à des fins de concentration ou de manipulation d'entités biologiques dans les gouttes. Néanmoins, ces recirculations peuvent être utilisées pour favoriser le mélange dans une goutte activée par électromouillage et maintenue en position fixe [Malk, Rival et al. 2010]. C'est ce que nous montrons dans le paragraphe suivant.

3. Mélange en goutte en configuration fermée

Ce paragraphe reprend une partie des travaux d'Arnaud Rival sur le mélange de goutte en configuration fermée et permet d'illustrer l'une des applications des écoulements hydrodynamiques en électromouillage. Pour plus de détails sur cette partie, le lecteur pourra donc se reporter à la thèse d'Arnaud Rival (2010).

a. Protocole

Le protocole pour suivre le mélange dans une goutte est le suivant. On réalise la coalescence entre deux gouttes de PBS, l'une contenant des sondes fluorescentes (FluoProbes488, Interchim) dont le coefficient de diffusion est égal à $400 \pm 40 \mu\text{m}^2/\text{s}$, et l'autre ne contenant aucun marqueur. Le signal électrique ayant permis la coalescence des deux gouttes est

maintenue si bien que la goutte coalescée recouvre les deux électrodes activées. On suit alors l'intensité de fluorescence de la goutte coalescée au cours du temps et on calcule son écart maximum. A la fin de l'expérience, le niveau de gris dans la goutte devrait être homogène et l'écart de niveau de gris égale à 0%. Néanmoins, les contours des électrodes et la présence d'inclusions d'huile introduisent un bruit de fond de l'ordre de 10%. L'expérience est reproduite avec différents signaux électriques : un signal continu, un signal alternatif de fréquence 70 Hz puis de fréquence 3 kHz. L'amplitude du signal électrique est de 60 V et 60 V_{eff} pour les signaux continu et alternatif respectivement.

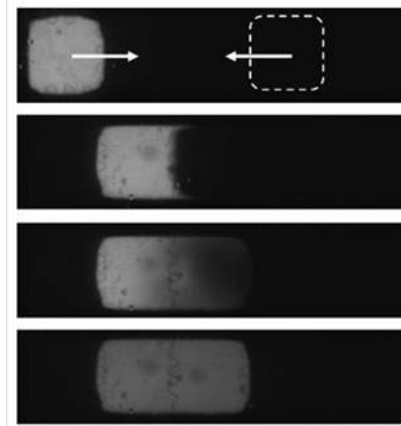


Fig. 146 Coalescence de deux gouttes ayant servie au suivi du mélange en configuration fermée.

b. Mélange en gouttes activées par électromouillage

Les courbes représentées sur la figure 147 montrent l'évolution de l'écart de niveau de gris dans la goutte coalescée en fonction du temps.

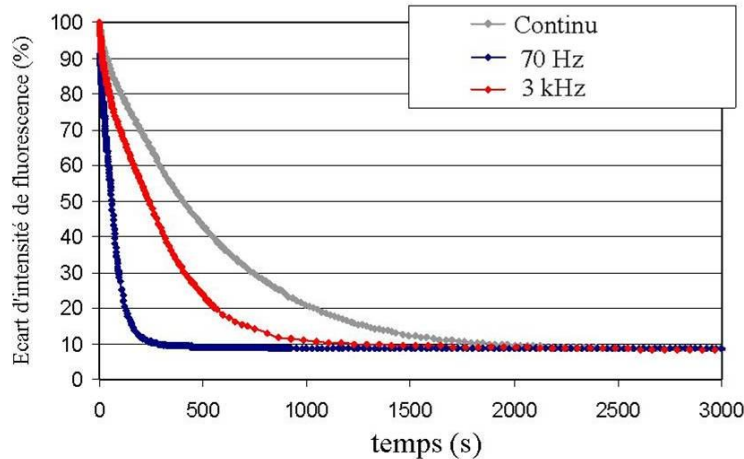


Fig. 147 Ecart d'intensité de fluorescence de la goutte coalescée en fonction du temps. Figure tirée de [Malk, Rival et al. 2010].

Pour chacune de ces courbes, on peut identifier un coefficient de diffusion apparent D_{app} tel que l'écart d'intensité E_i soit égal à (Rival, 2010) :

$$E_i \approx \frac{\sqrt{2}}{\pi} \exp\left(-2\left(\frac{\pi}{L}\right)^2 D_{app} t\right), \quad (202)$$

où L représente la longueur des électrodes.

On observe que lorsque la goutte est activée avec un signal continu, le mélange est très lent et prend plus de 1800 secondes pour se réaliser. On trouve une valeur D_{app} de $400 \mu\text{m}^2/\text{s}$, c'est à dire égale à la diffusivité du fluorophore dans le PBS, signifiant que le mélange n'est gouverné que par la diffusion Brownienne. Au contraire, avec un signal électrique alternatif, le mélange est beaucoup plus rapide : à 3 kHz, ce temps est de l'ordre de 1000 secondes tandis qu'à 70 Hz, il est inférieur à 300 secondes, correspondant à des diffusivités apparentes de 660 et $2800 \mu\text{m}^2/\text{s}$ respectivement. En effet, à 3 kHz, un écoulement apparaît mais il est confiné près des bords de la goutte et les vitesses sont faibles. Néanmoins cela suffit à créer un effet convectif et à accélérer le processus de mélange. A 70 Hz, les recirculations sont beaucoup plus importantes, la quantité de mouvement diffuse en volume et le mélange est beaucoup plus rapide.

Ces expériences permettent d'illustrer une application pratique et robuste des écoulements en gouttes activés par électromouillage.

c. Discussion sur le mélange en électromouillage

Dans les systèmes d'électromouillage, le mélange peut également se produire en déplaçant les gouttes en va et vient [Fouillet, Jary et al. 2006] ou en produisant des déplacements cycliques rectangulaires [Fowler, Moon et al. 2002; Paik, Pamula et al. 2003]. Le déplacement de la goutte produit alors un mouvement de convection interne induit par le frottement visqueux sur les surfaces solides de la puce et favorisant ainsi le brassage. L'effet du déplacement sur le temps de mélange est beaucoup plus efficace que celui des oscillations de la surface d'une goutte maintenue en position statique (seulement 20 secondes avec des déplacements linéaires avec un signal électrique continu contre près de 300 avec des oscillations). Néanmoins, c'est en combinant déplacement et oscillations que le temps de mélange est le plus rapide (9 secondes). Ainsi, le déplacement de la goutte doit se faire avec un signal électrique de basse fréquence (70 Hz environ) afin d'induire en plus une convection due aux oscillations. Plus de détails sur ces aspects peuvent être trouvés dans la thèse d'Arnaud Rival (2010) mais l'on comprend que le domaine d'application pratique des recirculations induites par les oscillations de goutte est pour le moment restreint. Par ailleurs, cette étude a montré que l'EWOD peut être utilisé pour mesurer le coefficient de diffusion d'une espèce chimique et que la condition nécessaire est d'imposer un signal électrique continu.

Conclusion du chapitre 5 :

Ce chapitre a permis de mettre en évidence le phénomène d'écoulements en gouttes activés par électromouillage sous huile. Le passage sous huile étant une condition nécessaire dès lors que l'on veut développer des applications pour la biologie. Suivant la configuration utilisée, deux applications potentiellement exploitables sont présentées.

En configuration ouverte (**partie A**), les écoulements sous huile entraînent un effet de concentration de particules au centre de recirculations à la surface de la goutte (agglomérats de billes) ou en volume (agglomérats de cellules). Suivant la fréquence du signal électrique, les agglomérats peuvent être déplacés de la base de la goutte (haute fréquence, 3000 Hz) vers l'apex de la goutte (basse fréquence, 150 Hz). Dans le cas où ils sont localisés en surface, la déformation induite par l'espace inter-électrodes agit comme un puits de collecte dans lequel les particules se dirigent pour les fréquences les plus élevées. La détermination de l'écoulement dans la goutte nécessite une étude plus approfondie mais l'observation montre que l'espace inter-électrodes (100 μm) influe sur le mouillage et le régime d'oscillations et donc sur l'écoulement. Le pilotage fréquentiel, reproductible et réversible, des agglomérats laisse entrevoir la possibilité d'exploiter ces recirculations afin de concentrer des particules en goutte et de les manipuler. Néanmoins, la configuration coplanaire, dite ouverte, n'offre que très peu de possibilités en termes de fonctions fluidiques et le phénomène est difficilement exploitable en tant que tel.

En configuration fermée (**partie B**), les oscillations ne sont pas observables en raison de contraintes expérimentales, néanmoins un écoulement est observé lorsqu'un signal électrique alternatif est utilisé. La goutte adopte une forme allongée et une configuration stable d'écoulement quadripolaire est observée entre 30 et 150 Hz. Cette configuration d'écoulement quadripolaire, très proche de celle observée en configuration ouverte avec des électrodes rectangulaires, peut être décrite par un modèle 2-D fondé sur le concept de courant de dérive. Les expériences étant réalisées sous huile, les oscillations sont moins amples et plus rapidement amorties, ce qui explique que les vitesses moyennes d'écoulement soient plus faibles. A fréquence plus élevée, les oscillations sont fortement amorties, l'écoulement s'atténue et les agglomérats se concentrent alors sur les contours de la goutte. Une application pratique de ces écoulements en configuration fermée concerne le mélange en goutte. Les écoulements en goutte créent en effet un brassage qui favorise le mélange dans la goutte. Pour une goutte maintenue en position statique, le temps de mélange peut ainsi être réduit de 85 % environ. Cette fonction pourrait être utilisée pour imposer, dans une goutte maintenue en position fixe, un brassage d'intensité ajustable par la fréquence d'actuation.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de cette thèse était de comprendre l'origine d'un phénomène observé lors d'expériences exploratoires menées dans le laboratoire. Des recirculations hydrodynamiques sont créées dans une goutte activée par électromouillage avec un signal électrique alternatif. L'idée d'exploiter à terme ce phénomène pour compléter la palette de fonctions disponibles en électromouillage a motivé la réalisation de notre travail. Bien que le phénomène ait été mis en évidence à l'origine avec une configuration d'électrodes rectangulaires produisant une structure d'écoulement quadripolaire caractéristique, l'étude s'est rapidement focalisée sur un motif d'électrodes héli-circulaires plus propice au développement de modèles. Deux axes de recherche ont été successivement explorés pour expliquer l'origine des écoulements en goutte :

La première piste d'exploration fût l'étude des contraintes électriques de surface produites en électromouillage et plus particulièrement de la composante tangentielle susceptible de générer un écoulement surfacique via un mécanisme dit de Taylor-Melcher. L'évaluation de cette composante est en soi originale car elle n'avait jamais été réellement considérée en électromouillage auparavant. Elle s'est faite par une double approche numérique et expérimentale. Au fur et à mesure des calculs et des observations, cette hypothèse s'est révélée invalidée et l'étude s'est recentrée sur un phénomène encore peu connu en électromouillage : les oscillations de gouttes.

L'étude des oscillations n'a pu se faire qu'au prix d'améliorations portant sur le banc expérimental et le développement de logiciels dédiés à l'acquisition et à l'analyse des oscillations (Oscill EWOD). L'étude expérimentale a permis de mettre en évidence des spectres de résonance, de quantifier la dépendance des profils de goutte ainsi que le déplacement de la ligne de contact à la tension électrique (valeur efficace, fréquence). Les conditions expérimentales permettant d'assurer la robustesse du phénomène ont pu être identifiées (notamment la lubrification de la surface de la puce). Le phénomène de courant de dérive liant les oscillations de la goutte et les écoulements induits a ensuite pu être étudié de manière expérimentale, théorique et numérique. Nous avons pu mettre en évidence des configurations d'écoulement axisymétriques spécifiques à certains modes d'oscillations (modes 2 à 6) et reproduire numériquement ces configurations à l'aide d'un modèle inspiré de Ko *et al.* (2009) et adapté à notre étude. Au-delà de 450 Hz cependant, les écoulements ne sont plus prédictibles dans cette configuration. Forts des analyses et modèles produits dans une configuration de mouillage axisymétrique, nous sommes alors revenus à la configuration d'étude initiale produisant une structure d'écoulement quadripolaire. Nous avons caractérisé le régime d'oscillations et montré que dans cette configuration, les oscillations ne sont plus axisymétriques, mais orientées suivant une direction privilégiée imposée par le rapport d'aspect géométrique des électrodes. D'après notre modèle, le caractère orienté des oscillations suffit à imposer la structure d'écoulement quadripolaire.

La possibilité d'exploiter le phénomène d'écoulement a ensuite été envisagée :

Sous huile, nous avons mis en évidence un effet de concentration de billes et des cellules biologiques, respectivement à la surface et dans le volume de la goutte. La position des agglomérats peut alors être réglée précisément et de manière réversible en ajustant la fréquence du signal électrique. La maîtrise du positionnement des agglomérats dans la goutte permettrait d'envisager des applications futures qui restent à identifier.

Dans une configuration fermée beaucoup plus utilisée en pratique, on montre que les écoulements existent et qu'ils s'organisent en une structure quadripolaire liée à la forme allongée qu'adopte la goutte prise en sandwich. La fonction de concentration est beaucoup moins efficace qu'en configuration ouverte sous huile et l'on évalue alors l'influence des écoulements sur le brassage en goutte. On montre que l'usage d'un signal alternatif accélère le mélange en goutte de manière significative par rapport à un signal continu.

Si ce travail a permis de mieux comprendre l'origine des écoulements en électromouillage, il a également soulevé un certain nombre de perspectives d'étude qu'il serait intéressant de mener par la suite. Une liste non exhaustive comporte les points suivants :

i) L'étude du film d'huile sous la goutte incluant d'une part, la prise en compte de la lubrification de la surface de la puce pour les expériences sous air et d'autre part, le cas d'une goutte immergée dans un bain d'huile et sous laquelle des épaisseurs de films de plusieurs centaines de nanomètres (voire de quelques micromètres) doivent être confirmées.

ii) Le développement d'un modèle numérique d'électromouillage permettant de prendre en compte la géométrie microscopique de la goutte et de gérer la singularité de calcul au point triple. L'estimation des contraintes électriques de surface s'en trouverait alors considérablement améliorée et le modèle pourrait servir au dimensionnement des puces à électromouillage.

iii) L'étude expérimentale des écoulements à hautes fréquences (120 kHz...) pour lesquels les effets électrothermiques semblent prépondérants (Lee *et al.* 2009) mais pour lesquels le régime haute fréquence est également susceptible de favoriser l'émergence de contraintes tangentielles surfaciques.

iv) Un modèle d'oscillation non linéaire tenant compte de la dissipation visqueuse induite par le déplacement de la ligne triple et de l'hystérésis d'angle de contact et permettant de mieux évaluer les amplitudes d'oscillation à la résonance.

v) L'étude des écoulements non axisymétriques avec motif d'électrodes hémicirculaires. En effet, la rupture de symétrie et le caractère non reproductible des écoulements au-delà du mode 6 reste encore à étudier notamment afin de vérifier si des ruptures d'axisymétries « microscopiques » peuvent déstabiliser l'écoulement.

vi) La caractérisation approfondie des écoulements sous huile afin de déterminer la raison pour laquelle des effets de concentration sont observés avec certaines cellules et pas avec d'autres (globules rouges).

ANNEXES

Annexe 1 : Exemple d'utilisation du logiciel Easy Ewod

Les interfaces graphiques ont été soignées de manière à rendre l'utilisation du logiciel aussi simple que possible. Après avoir chargé la série d'images, l'utilisateur renseigne dans la première partie les paramètres de réglage (ajustement de la luminosité, rotation des images...), saisit pour une image référence les coordonnées de deux points situés sur la ligne de contact puis lance l'analyse. Le calcul itératif permet de détecter le profil des images et de déterminer les paramètres de mouillage de toute la série d'images sans que l'utilisateur n'ait à intervenir.

La deuxième étape consiste à saisir les paramètres de l'expérience (épaisseur des couches diélectriques, espace inter-électrodes, tensions d'activation...) afin de tracer les courbes théoriques et de les comparer aux courbes expérimentales. Le logiciel génère également un fichier Excel regroupant l'ensemble des données. Le logiciel dédié aux analyses d'oscillations fonctionne de manière similaire.

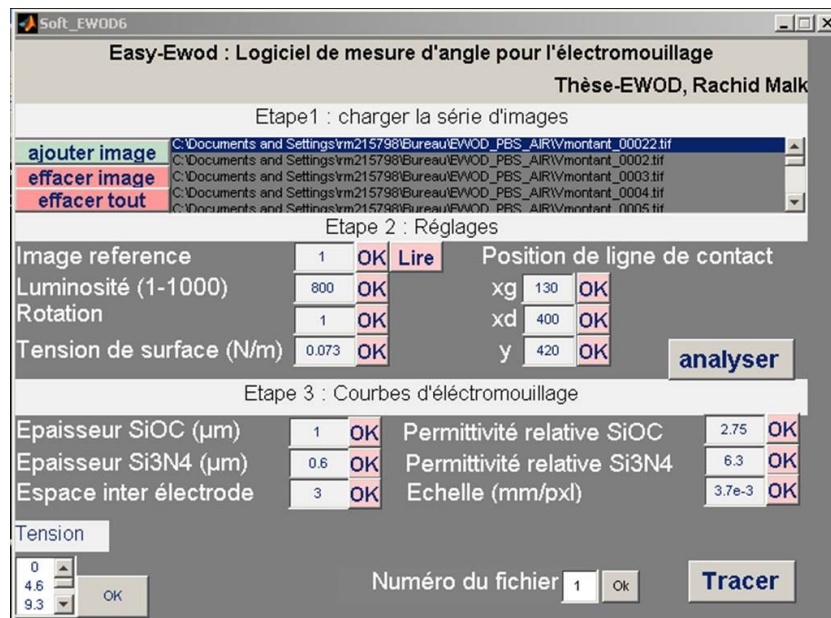


Fig. 148 Interface graphique du logiciel *Easy-EWOD*.

Là où plus d'une heure était nécessaire pour réaliser une expérience d'électromouillage, analyser les résultats avec *Digidrop* et réaliser les courbes d'électromouillage, le logiciel *Easy-EWOD* permet de réaliser cela en moins de dix minutes tout en allégeant considérablement la tâche de l'expérimentateur. Le logiciel *Oscill-EWOD* a permis de rendre possible l'analyse des expériences d'oscillation. En raison d'un plus grand nombre d'images à acquérir et à analyser (jusqu'à 144, correspondant à deux périodes du signal d'alimentation échantillonnée tous les 5°), ainsi que d'un temps d'analyse plus long (calcul itératif pour la décomposition en modes propres), les expériences d'oscillations nécessitent environ 1 h, de la réalisation jusqu'au tracé des courbes.

Annexe 2 : Polynômes de Legendre

Les polynômes de Legendre P_k sont des polynômes de degré k définis sur l'intervalle $[-1,1]$ tel que $P_k(1) = 1$ et orthogonaux pour le produit scalaire :

$$\langle f, g \rangle = \int_{-1}^1 f(x)g(x)dx .$$

Ces polynômes interviennent dans l'expression des solutions de l'équation de Laplace et sont donc très utilisés en théorie potentielle. Ils peuvent être définis par la formule de Rodrigues :

$$P_k = \frac{1}{2^k k!} \frac{d^k}{dx^k} ((x^2 - 1)^k),$$

ou encore par récurrence (formule de Bonnet) :

$$P_0(x) = 1$$

$$P_1(x) = x$$

et pour tout entier $k > 1$:

$$(k + 1)P_{k+1}(x) = (2k + 1)xP_k(x) - kP_{k-1}(x).$$

On a alors :

$$P_2(x) = \frac{1}{2}(3x^2 - 1),$$

$$P_4(x) = \frac{1}{8}(35x^4 - 30x^2 + 3),$$

$$P_6(x) = \frac{1}{16}(231x^6 - 315x^4 + 105x^2 - 5),$$

....

Annexe 3 : Expression des vitesses de dérive utilisée dans le modèle d'écoulement

La vitesse de dérive créée par des oscillations de goutte axisymétrique de degré k s'écrit :

$$U_k^s = -\frac{3}{4R_0\xi_k}U_k^\infty \frac{dU_k^\infty}{d\theta} = -\frac{3A_k^2\xi_k}{8R_0k^2} \frac{d}{d\theta} (P_k'(\cos\theta))^2.$$

Le calcul du terme :

$$\frac{d}{d\theta} (P_k'(\cos\theta))^2,$$

avec :

$$P_k'(\cos\theta) = \frac{dP_k(\cos(\theta))}{d\theta},$$

s'écrit pour les modes de degré 2, 4 et 6, suivant les expressions :

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\theta} (P_2'(\cos\theta))^2 &= \frac{18}{4} \sin(4\theta), \\ \frac{d}{d\theta} (P_4'(\cos\theta))^2 &= -\frac{25}{64} (7 \sin(2\theta) - 2 \sin(4\theta) - 21 \sin(6\theta) - 49 \sin(8\theta)), \\ \frac{d}{d\theta} (P_6'(\cos\theta))^2 &= -\frac{441}{32768} (456 \sin(2\theta) + 305 \sin(4\theta) - 180 \sin(6\theta) \\ &\quad - 948 \sin(8\theta) - 1980 \sin(10\theta) - 3267 \sin(12\theta)). \end{aligned}$$

Ces expressions sont implantées dans le modèle pour définir la vitesse de dérive en tant que condition limite à la surface de la goutte.

BIBLIOGRAPHIE

- Abdelgawad, M., S. L. S. Freire, et al. (2008). "All-terrain droplet actuation." Lab on a Chip **8**(5): 672-677.
- Abdelgawad, M., P. Park, et al. (2009). "Optimization of device geometry in single-plate digital microfluidics." Journal of Applied Physics **105**(9): 094506.
- Andrade, E. N. (1931). Proc. Roy. Soc. (A) **134**(445).
- Aref, H. (1984). "Stirring by Chaotic Advection." Journal of Fluid Mechanics **143**(JUN): 1-21.
- Batchelor, G. K. (1967). An Introduction to Fluid Dynamics.
- Bau, H. H., J. Zhong, et al. (2001). "A minute magneto hydro dynamic (MHD) mixer." Sensors and Actuators B: Chemical **79**(2-3): 207-215.
- Baviere, R., J. Boutet, et al. (2008). "Dynamics of droplet transport induced by electrowetting actuation." Microfluidics and Nanofluidics **4**(4): 287-294.
- Berge, B. (1993). "Electrocapillarity and Wetting of Insulator Films by Water." Comptes Rendus De L'Academie Des Sciences Serie II **317**(2): 157-163.
- Berry, S., J. Kedzierski, et al. (2006). "Low voltage electrowetting using thin fluoropolymer films." Journal of Colloid and Interface Science **303**(2): 517-524.
- Bibette, J. and F. LealCalderon (1996). "Surfactant-stabilized emulsions." Current Opinion in Colloid & Interface Science **1**(6): 746-751.
- Bienia, M. (2005). Etude de déformation de goutte et de film mince induite électriquement. Grenoble, Université Joseph Fourier.
- Bienia, M., F. Mugele, et al. (2004). "Droplets profiles and wetting transitions in electric fields." Physica a-Statistical Mechanics and Its Applications **339**(1-2): 72-79.
- Bienia, M., M. Vallade, et al. (2006). "Electrical-field-induced curvature increase on a drop of conducting liquid." Europhysics Letters **74**(1): 103-109.
- Bostwick, J. B. and P. H. Steen (2009). "Capillary oscillations of a constrained liquid drop." Physics of Fluids **21**(3): 10.
- Buehrle, J., S. Herminghaus, et al. (2003). "Interface profiles near three-phase contact lines in electric fields." Physical Review Letters **91**(8): 086101.
- Buguin, A., L. Talini, et al. (2002). "Ratchet-like topological structures for the control of microdrops." Applied Physics a-Materials Science & Processing **75**(2): 207-212.
- Burns, M. A., B. N. Johnson, et al. (1998). "An integrated nanoliter DNA analysis device." Science **282**(5388): 484-487.
- Carrière, Z. (1929). J. Phys. Radium **10**(198).
- Chin, C. D., V. Linder, et al. (2007). "Lab-on-a-chip devices for global health: Past studies and future opportunities." Lab on a Chip **7**(1): 41-57.
- Cho, S. K., H. J. Moon, et al. (2003). "Creating, transporting, cutting, and merging liquid droplets by electrowetting-based actuation for digital microfluidic circuits." Journal of Microelectromechanical Systems **12**(1): 70-80.
- Chung, S. K. and S. K. Cho (2008). "On-chip manipulation of objects using mobile oscillating bubbles." Journal of Micromechanics and Microengineering **18**(12): 12.
- Chung, S. K. and S. K. Cho (2009). "3-D manipulation of millimeter- and micro-sized objects using an acoustically excited oscillating bubble." Microfluidics and Nanofluidics **6**(2): 261-265.

- Cooney, C. G., C. Y. Chen, et al. (2006). "Electrowetting droplet microfluidics on a single planar surface." Microfluidics and Nanofluidics **2**(5): 435-446.
- Dario, P., N. Croce, et al. (1996). "A fluid handling system for a chemical microanalyzer." Journal of Micromechanics and Microengineering **6**(1): 95-98.
- Davoust, L., Y. Fouillet, et al. (2007). "Drop stirring flow under ewod and ehd actuation: a new step towards biological sample preparation." Proceedings of μ Tas 2007, ISBN : 978-0-9798064-0-7, **2**: 925 – 927.
- Dittrich, P. S., K. Tachikawa, et al. (2006). "Micro total analysis systems. Latest advancements and trends." Analytical Chemistry **78**(12): 3887-3907.
- Drygiannakis, A. I., A. G. Papathanasiou, et al. (2009). "On the Connection between Dielectric Breakdown Strength, Trapping of Charge, and Contact Angle Saturation in Electrowetting." Langmuir **25**(1): 147-152.
- Dubois, P., G. Marchand, et al. (2005). Ionic liquid droplet as microreactor displaced by electrowetting on dielectric. Micro Total Analysis Systems, Boston, USA.
- Dubois, P., G. Marchand, et al. (2007). "Reaction rates as a function of scale within ionic liquids: Microscale in droplet microreactors versus macroscale reactions in the case of the grieco three-component condensation reaction." Chemistry-a European Journal **13**(19): 5642-5648.
- Fair, R. B. (2007). "Digital microfluidics: is a true lab-on-a-chip possible?" Microfluidics and Nanofluidics **3**(3): 245-281.
- Fair, R. B. (2009). Digital Microfluidic Chips for Chemical and Biological Applications. Embc: 2009 Annual International Conference of the Ieee Engineering in Medicine and Biology Society, Vols 1-20. New York, Ieee: 6560-6564.
- Faraday, M. (1831). Trans.Roy.Soc. (London) **121**,(229).
- Felton, M. J. (2003). "Lab on a chip: Poised on the brink." Analytical Chemistry **75**(23): 505A-508A.
- Fouillet, Y., D. Jary, et al. (2006). Ewod digital microfluidics for lab on a chip. ASME ICNMM, Limerick, Ireland.
- Fouillet, Y., D. Jary, et al. (2007). "Digital microfluidic design and optimization of classic and new fluidic functions for lab on a chip systems." Microfluidics and Nanofluidics(Published online): In press.
- Fowler, J., H. J. Moon, et al. (2002). Enhancement of mixing by droplet-based microfluidics. Fifteenth Ieee International Conference on Micro Electro Mechanical Systems, Technical Digest. New York, Ieee: 97-100.
- Froumkine, A. N. (1936). "Couche double. Electrocapillarité. Surtension." A. N. Actualités Scientifiques et Industrielles **373**, 5–36
- Garcia-Sanchez, P., A. Ramos, et al. "Electrothermally driven flows in ac electrowetting." Physical Review E **81**(1): 4.
- Garstecki, P., I. Gitlin, et al. (2004). "Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device." Applied Physics Letters **85**(13): 2649-2651.
- Gong, J., S. K. Fan, et al. (2004). Portable digital microfluidics platform with active but disposable lab-on-chip. Mems 2004: 17th Ieee International Conference on Micro Electro Mechanical Systems, Technical Digest. New York, Ieee: 355-358.
- Haeberle, S. and R. Zengerle (2007). "Microfluidic platforms for lab-on-a-chip applications." Lab on a Chip **7**(9): 1094-1110.
- Hessel, V., H. Lowe, et al. (2005). "Micromixers - a review on passive and active mixing principles." Chemical Engineering Science **60**(8-9): 2479-2501.
- Hong, J. S., S. H. Ko, et al. (2008). "A numerical investigation on AC electrowetting of a droplet." Microfluidics and Nanofluidics **5**(2): 263-271.

- Huang, N. E. (1970). "Mass Transport Induced by Wave Motion." Journal of Marine Research **28**(1): 35-&.
- Huh, C. and L. E. Scriven (1971). "Hydrodynamic Model of Steady Movement of a Solid/Liquid/Fluid Contact Line." Journal of Colloid and Interface Science **35**(1): 85-&.
- Hung, T. K., H. S. Borovetz, et al. (1977). "Transport and Flow Phenomena in a Microchannel Membrane Oxygenator." Annals of Biomedical Engineering **5**(4): 343-361.
- Jackson, J., Ed. (1999). Classical electrodynamics. Wiley, Hoboken.
- Jacobson, S. C., R. Hergenroder, et al. (1994). "Precolumn Reactions with Electrophoretic Analysis Integrated on a Microchip." Analytical Chemistry **66**(23): 4127-4132.
- Jamelot, E. (2005). Résolution des équations de Maxwell avec des éléments finis de Galerkin continus. Thèse de doctorat de l'école Polytechnique.
- Jang, L. S., G. H. Lin, et al. (2007). "Simulation and experimentation of a microfluidic device based on electrowetting on dielectric." Biomedical Microdevices **9**(6): 777-786.
- Janocha, B., H. Bauser, et al. (2000). "Competitive electrowetting of polymer surfaces by water and decane." Langmuir **16**(7): 3349-3354.
- Jayaraman, G. and A. Sarkar (2005). "Nonlinear analysis of arterial blood flow - steady streaming effect." Nonlinear Analysis-Theory Methods & Applications **63**(5-7): 880-890.
- Jeong, O. C. and S. S. Yang (2000). "Fabrication and test of a thermopneumatic micropump with a corrugated p plus diaphragm." Sensors and Actuators a-Physical **83**(1-3): 249-255.
- Jones, T. B. (2002). "On the relationship of dielectrophoresis and electrowetting." Langmuir **18**(11): 4437-4443.
- Jones, T. B., M. Gunji, et al. (2001). "Dielectrophoretic liquid actuation and nanodroplet formation." Journal of Applied Physics **89**(2): 1441-1448.
- Jones, T. B., K. L. Wang, et al. (2004). "Frequency-dependent electromechanics of aqueous liquids: Electrowetting and dielectrophoresis." Langmuir **20**(7): 2813-2818.
- Kang, K. H. (2002). "How electrostatic fields change contact angle in electrowetting." Langmuir **18**(26): 10318-10322.
- Kang, K. H., S. J. Leel, et al. (2004). "Quantitative visualization of flow inside an evaporating droplet using the ray tracing method." Measurement Science & Technology **15**(6): 1104-1112.
- Kelvin, L. (1890). "Mathematical and Physical Papers" (Clay, London).
- Ko, S. H., H. Lee, et al. (2008). "Hydrodynamic flows in electrowetting." Langmuir **24**(3): 1094-1101.
- Ko, S. H., S. J. Lee, et al. (2009). "A synthetic jet produced by electrowetting-driven bubble oscillations in aqueous solution." Applied Physics Letters **94**(19): 3.
- Laksanasopin, T., C. D. Chin, et al. (2009). Microfluidic Point-of-Care Diagnostics for Resource-Poor Environments. Embc: 2009 Annual International Conference of the Ieee Engineering in Medicine and Biology Society, Vols 1-20. New York, Ieee: 1057-1059.
- Lamb, H. (1881). "On the oscillations of a viscous spheroid. ." Proc. Lond. Math. SW. **13**, 51-56.
- Lamb, H. (1932). Hydrodynamics, Cambridge University Press.
- Laser, D. J. and J. G. Santiago (2004). "A review of micropumps." Journal of Micromechanics and Microengineering **14**(6): R35-R64.
- Lee, H., S. Yun, et al. (2009). "An electrohydrodynamic flow in ac electrowetting." Biomicrofluidics **3**(4): 12.

- Lighthill, J. (1991). "Biomechanics of Hearing Sensitivity." Journal of Vibration and Acoustics-Transactions of the Asme **113**(1): 1-13.
- Lighthill, J. (1992). "Acoustic Streaming in the Ear Itself." Journal of Fluid Mechanics **239**: 551-606.
- Lippmann, G. (1875). Relations entre les phénomènes électriques et capillaires, Phd Thesis, Facultés des sciences.
- Liu, R. H., J. N. Yang, et al. (2002). "Bubble-induced acoustic micromixing." Lab on a Chip **2**(3): 151-157.
- Loe-Mie, F., G. Marchand, et al. "Towards an Efficient Microsystem for the Real-Time Detection and Quantification of Mercury in Water Based on a Specifically Designed Fluorogenic Binary Task-Specific Ionic Liquid." Angewandte Chemie-International Edition **49**(2): 424-427.
- Lu, H. W., F. Bottausci, et al. (2008). "A study of EWOD-driven droplets by PIV investigation." Lab on a Chip **8**(3): 456-461.
- Luk, V. N., G. C. H. Mo, et al. (2008). "Pluronic additives: A solution to sticky problems in digital microfluidics." Langmuir **24**(12): 6382-6389.
- Lutz, B. R., J. Chen, et al. (2003). "Microfluidics without microfabrication." Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **100**(8): 4395-4398.
- Malk, R., L. Davoust, et al. (2007). Effets électrohydrodynamiques pour les labopuces, mémoire Master 2 recherche. INPG. Grenoble.
- Malk, R., L. Davoust, et al. (2010). "EWOD-based chip characterization under AC voltage " Microelectronic Engineering.
- Malk, R., Y. Fouillet, et al. (2010). "Rotating flow within a droplet actuated with AC EWOD." Sens. Actuators B: Chem. (2010): doi:10.1016/j.snb.2009.12.066.
- Malk, R., A. Rival, et al. (2010). EWOD in Coplanar Electrode Configurations 8th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels. Montreal, Canada, ASME 2010.
- Manz, A., N. Graber, et al. (1990). "Miniaturized Total Chemical-Analysis Systems - a Novel Concept for Chemical Sensing." Sensors and Actuators B-Chemical **1**(1-6): 244-248.
- Marmottant, P. and S. Hilgenfeldt (2004). "A bubble-driven microfluidic transport element for bioengineering." Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **101**(26): 9523-9527.
- Melcher, J. R. and G. I. Taylor (1969). "Electrohydrodynamics - a Review of Role of Interfacial Shear Stresses." Annual Review of Fluid Mechanics **1**: 111-&.
- Mellors, J. S., K. Jorabchi, et al. "Integrated Microfluidic Device for Automated Single Cell Analysis Using Electrophoretic Separation and Electrospray Ionization Mass Spectrometry." Analytical Chemistry **82**(3): 967-973.
- Minor, G., P. Oshkai, et al. (2007). "Optical distortion correction for liquid droplet visualization using the ray tracing method: further considerations." Measurement Science & Technology **18**(11): L23-L28.
- Miraghaie, R., J. D. Sterling, et al. (2006). "Shape Oscillation and Internal Mixing in Sessile Liquid Drops using ElectroWetting-On-Dielectric (EWOD)." Technical Proceedings of the 2006 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show Volume 2: 610 - 613.
- Morga, M., G. y. Para, et al. "Improvement of Wetting Properties of Colloid Silica Binders." Industrial & Engineering Chemistry Research: null-null.
- Moulinet, S. (2003). Rugosité et dynamique d'une ligne de contact sur un substrat désordonné. Paris, Université Denis Diderot, Paris 7: p.119.
- Mugele, F. (2009). "Fundamental challenges in electrowetting: from equilibrium shapes to contact angle saturation and drop dynamics." Soft Matter **5**(18): 3377-3384.

- Mugele, F. and J. C. Baret (2005). "Electrowetting: From basics to applications." Journal of Physics-Condensed Matter **17**(28): R705-R774.
- Mugele, F., A. Klingner, et al. (2005). "Electrowetting: a convenient way to switchable wettability patterns." Journal of Physics-Condensed Matter **17**(9): S559-S576.
- Oh, J. M., S. H. Ko, et al. (2008). "Shape oscillation of a drop in ac electrowetting." Langmuir **24**(15): 8379-8386.
- Oh, J. M., S. H. Ko, et al. (2010). "Analysis of electrowetting-driven spreading of a drop in air." Physics of Fluids **22**(3): 10.
- Oh, K. W. and C. H. Ahn (2006). "A review of microvalves." Journal of Micromechanics and Microengineering **16**(5): R13-R39.
- Padrino, J. C., T. Funada, et al. (2008). "Purely irrotational theories for the viscous effects on the oscillations of drops and bubbles." International Journal of Multiphase Flow **34**(1): 61-75.
- Paik, P., V. K. Pamula, et al. (2003). "Electrowetting-based droplet mixers for microfluidic systems." Lab on a Chip **3**(1): 28-33.
- Paik, P. Y., K. Chakrabarty, et al. (2008). "A digital-microfluidic approach to chip cooling." Ieee Design & Test of Computers **25**(4): 372-381.
- Park, J. K., S. J. Lee, et al. "Fast and reliable droplet transport on single-plate electrowetting on dielectrics using nonfloating switching method." Biomicrofluidics **4**(2): 8.
- Pashos, G. P., A. G.; Boudouvis, A. G. (2008). Treatment of electric field singularities at solid-liquid-air junctions in electrowetting-on-dielectric computations. In 8th World Congress on Computational Mechanics (WCCM8) & 5th European Congress on Computational Methods in Applied Sciences and Engineering (ECCOMAS 2008). Lido Island in Venice, Italy.
- Pellat, H. (1895). "Mesure de la force agissant sur les diélectriques liquides non électrisés placés dan un champ électrique." C.R. Acad. Sci. Paris **119**: 691-694.
- Peykov, V., A. Quinn, et al. (2000). "Electrowetting: a model for contact-angle saturation." Colloid and Polymer Science **278**(8): 789-793.
- Plesset, M. S. (1954). "On the stability of Fluid Flows With Spherical Symmetry." J.Appl.Phys.: 25,96-98(1954).
- Pollack, M. G., A. D. Shenderov, et al. (2002). "Electrowetting-based actuation of droplets for integrated microfluidics." Lab on a Chip **2**(2): 96-101.
- Prosperetti, A. (1974). Viscous and nonlinear effects in the oscillations of drops and bubbles. California Institute of Technology. Pasadena: 150p.
- Quilliet, C. and B. Berge (2001). "Electrowetting: a recent outbreak." Current Opinion in Colloid & Interface Science **6**(1): 34-39.
- Quilliet, C. and B. Berge (2002). "Investigation of effective interface potentials by electrowetting." Europhysics Letters **60**(1): 99-105.
- Raccurt, O., J. Berthier, et al. (2007). "On the influence of surfactants in electrowetting systems." Journal of Micromechanics and Microengineering **17**(11): 2217-2223.
- Rayleigh, L. (1879). "On the capillary phenomena of jets." Proc. R. Sot. Lend. **29**,71-97.
- Rayleigh, L. (1884). "Phil.Trans.(A)." **175**(1).
- Riley, N. (1965). "Oscillating viscous flows." Mathematika **12**:161(-75).
- Riley, N. (1967). "Oscillating viscous flows: review and extension." J. Inst. Math. Appl. **3**:419(-34).
- Rival, A. (2010). Microfluidique digitale pour la préparation d'échantillon et l'analyse de l'expression de gènes par qRT-PCR Grenoble, Université Joseph Fourier.
- Scheid, C. and P. Witomski (2009). "A proof of the invariance of the contact angle in electrowetting." Mathematical and Computer Modelling **49**(3-4): 647-665.
- Schlichting, H. (1932). Phys. Z. **33**(327).

- Schlichting, H. (1979). Boundary-layer theory.
- Shapiro, B., H. Moon, et al. (2003). "Equilibrium behavior of sessile drops under surface tension, applied external fields, and material variations." Journal of Applied Physics **93**(9): 5794-5811.
- Shaw, S. J., P. D. M. Spelt, et al. (2009). "Electrically induced bubble deformation, translation and collapse." Journal of Engineering Mathematics **65**(4): 291-310.
- Squires, T. M. and S. R. Quake (2005). "Microfluidics: Fluid physics at the nanoliter scale." Reviews of Modern Physics **77**(3): 977-1026.
- Srinivasan, V., V. K. Pamula, et al. (2004). "An integrated digital microfluidic lab-on-a-chip for clinical diagnostics on human physiological fluids." Lab on a Chip **4**(4): 310-315.
- Staicu, A. and F. Mugele (2006). "Electrowetting-induced oil film entrapment and instability." Physical Review Letters **97**(16): 4.
- Stroock, A. D., S. K. W. Dertinger, et al. (2002). "Chaotic Mixer for Microchannels." Science **295**(5555): 647-651.
- Stuart, J. T. (1963). Laminar Boundary Layers. Oxford.
- Stuart, J. T. (1966). "Double boundary layers oscillatory viscous flows." J. Fluid Mech. **24**:673(-87).
- Tabeling, P. (2003). Introduction à la microfluidique, Belin.
- Terry (1975). PhD Thesis. Stanford University.
- Thery, J., M. Borella, et al. (2007). SIOC as a hydrophobic layer for electrowetting on dielectric applications. Micro Total Analysis Systems, Paris.
- Timouyas, H. (2003). Analyse et analyse numérique des singularités en électromagnétisme. Ecole doctorale MathIf, Ecole Centrale de Lyon.
- Torkkeli, A., J. Saarilahti, et al. (2001). Electrostatic transportation of water droplets on superhydrophobic surfaces. 14th Ieee International Conference on Micro Electro Mechanical Systems, Technical Digest: 475-478.
- Trinh, E., A. Zwern, et al. (1982). "An Experimental-Study of Small-Amplitude Drop Oscillations in Immiscible Liquid-Systems." Journal of Fluid Mechanics **115**(FEB): 453-474.
- Vallet, M., M. Vallade, et al. (1999). "Limiting phenomena for the spreading of water on polymer films by electrowetting." European Physical Journal B **11**(4): 583-591.
- Vanlintel, H. T. G., F. C. M. Vandepol, et al. (1988). "A Piezoelectric Micropump Based on Micromachining of Silicon." Sensors and Actuators **15**(2): 153-167.
- Wang, W., Z. X. Li, et al. (2005). "Droplet-based micro oscillating-flow PCR chip." Journal of Micromechanics and Microengineering **15**(8): 1369-1377.
- Wheeler, A. R., H. Moon, et al. (2005). "Digital microfluidics with in-line sample purification for proteomics analyses with MALDI-MS." Analytical Chemistry **77**(2): 534-540.
- Wu, J. G., R. F. Yue, et al. (2006). Design, simulation and fabrication of electrowetting-based actuators for integrated digital microfluidics. 2006 1st IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems, Vols 1-3. New York, Ieee: 1097-1100.
- Xia, H. M., S. Y. M. Wan, et al. (2005). "Chaotic micromixers using two-layer crossing channels to exhibit fast mixing at low Reynolds numbers." Lab on a Chip **5**(7): 748-755.
- Yarin, A. L., W. X. Liu, et al. (2002). "Motion of droplets along thin fibers with temperature gradient." Journal of Applied Physics **91**(7): 4751-4760.
- Yi, C. Q., C. W. Li, et al. (2006). "Microfluidics technology for manipulation and analysis of biological cells." Analytica Chimica Acta **560**(1-2): 1-23.

- Yi, U. C. and C. J. Kim (2006). "Characterization of electrowetting actuation on addressable single-side coplanar electrodes." Journal of Micromechanics and Microengineering **16**(10): 2053-2059.
- Zeng, J. (2006). "Modeling and simulation of electrified droplets and its application to computer-aided design of digital microfluidics." Ieee Transactions on Computer-Aided Design of Integrated Circuits and Systems **25**(2): 224-233.
- Zeng, J. and T. Korsmeyer (2004). "Principles of droplet electrohydrodynamics for lab-on-a-chip." Lab on a Chip **4**(4): 265-277.

Écoulements en gouttes activés par électromouillage

Résumé :

Parmi les différents mécanismes physiques permettant d'actionner des échantillons liquides au sein de labopuces, l'électromouillage sur diélectrique (EWOD) s'impose peu à peu comme une solution fiable permettant de manipuler en particulier des gouttes (labopuces digitaux). Bien que des modèles énergétiques permettent d'expliquer la plupart des fonctions fluidiques élémentaires obtenues par effet EWOD, il demeure certains phénomènes hydrodynamiques en goutte dont la compréhension à l'échelle locale présente des enjeux en termes scientifiques et applicatifs. En particulier, la maîtrise des oscillations de goutte et des écoulements électrohydrodynamiques induits par des signaux électriques alternatifs (AC-EWOD) pourrait permettre l'insertion de nouvelles fonctions dans les labopuces digitaux (brassage, séparation d'espèces).

Dans la thèse proposée, une configuration optimale a été retenue consistant en une goutte reposant sur deux électrodes coplanaires passivées. Un banc de caractérisation a été développé ainsi que des logiciels spécifiques dédiés à l'analyse du mouillage et des oscillations de la goutte. Une première étude permet de caractériser l'électromouillage d'une goutte en configuration d'électrodes coplanaires. En particulier, la modélisation des contraintes électriques surfaciques permet de conclure sur leurs rôles dans l'injection normale et tangentielle de quantité de mouvement. Les oscillations de la goutte et les écoulements induits sont ensuite étudiés de manière expérimentale. Suivant la géométrie des électrodes, des configurations d'écoulements axisymétriques et quadripolaires sont observées. Un modèle basé sur le concept de courant de dérive est développé ; sa résolution numérique par éléments finis permet de retrouver les configurations d'écoulement. Des applications biologiques de l'actuation EWOD en signal alternatif sont finalement proposées et discutées pour le développement de laboratoires sur puces.

Mots clefs :

Microfluidique, électromouillage, contrainte électrique, oscillations, courant de dérive ;

EWOD-driven flows within a sessile drop

Abstract :

Among numerous physical mechanisms enabling liquids actuation, electrowetting on dielectric (EWOD) is increasingly considered as a trustful solution enabling discrete liquid sample handling by using electrical fields. Although energetic models can explain most basic fluidic functions, some electrowetting phenomena still remain to be considered as scientific issues. So is the case for droplet oscillations and hydrodynamic flows induced by electrowetting when AC voltage is applied (AC EWOD). The understanding and mastering of these phenomena represent the objectives of this thesis. An open electrode configuration has been used in which the droplet straddles two insulated coplanar electrodes. An experimental setup and dedicated software for the measurement of droplet wetting and droplet oscillations have been developed. A first experimental and numerical study allowed us the characterization of electrowetting in the coplanar electrode configuration. The calculation of the electrical stress distribution delivers criteria which help to conclude about the involvement of tangential electrical stresses in drop convective flow. Then, droplet oscillations and induced flows are experimentally and theoretically investigated. Depending on electrode designs, axisymmetrical and quadripolar flows as well can be observed. A model based on steady streaming is implemented and structure flows are numerically reproduced using finite element method. Some practical applications of this research within the framework of lab-on-chips are proposed and discussed.

Keywords :

Microfluidics, electrowetting, electrical stress, oscillations, steady streaming.