



HAL
open science

Microsystèmes pour la génération et la caractérisation de fluides complexes

Maximilien Stoffel

► **To cite this version:**

Maximilien Stoffel. Microsystèmes pour la génération et la caractérisation de fluides complexes. Electronique. Université Paris-Est, 2013. Français. NNT : 2013PEST1202 . tel-03588604

HAL Id: tel-03588604

<https://theses.hal.science/tel-03588604>

Submitted on 25 Feb 2022

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

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

UNIVERSITÉ — — PARIS-EST

UNIVERSITE PARIS EST

ECOLE DOCTORALE 532 MSTIC

THESE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITE PARIS-EST

Spécialité : Electronique, Optronique et Systèmes

MAXIMILIEN STOFFEL

Soutenue le 03 Juin 2013

MICROSYSTEMES POUR LA GÉNÉRATION ET LA CARACTÉRISATION DE FLUIDES COMPLEXES

Thèse dirigée par Dan E. ANGELESCU

JURY

<i>Président du jury</i>	Tarik Bourouina	Professeur, ESIEE Paris
<i>Rapporteur</i>	Anke Lindner	Maître de conférences, PMMH-ESPCI
<i>Rapporteur</i>	Dominique Barthès-Biesel	Professeur émérite, UTC
<i>Examineur</i>	Elise Lorenceau	Chargé de recherche CNRS, Institut Navier
<i>Examineur</i>	Olivier Français	Maître de conférences, SATIE-ENS Cachan

A ma mère, mon père et ma sœur

REMERCIEMENTS

Mes remerciements s'adressent en premier lieu à Bruno Mercier pour m'avoir accueillie au sein du département SMM et m'avoir ouvert les portes de la technologie à l'échelle du nanomètre. Je voudrais ensuite remercier Yves Blanchard pour m'avoir guidé et conseillé lors de mes années d'enseignement.

Je voudrais ensuite remercier les membres du jury, Dominique Barthès-Biesel et Anke Lindner, rapporteurs, Elise Lorenceau et Olivier Français, examinateurs pour avoir examiné avec attention mon travail.

Je tiens ensuite à remercier mon directeur de thèse Dan Angelescu pour m'avoir offert la possibilité de réaliser cette thèse. Malgré de très lourdes sollicitations, il a toujours su être présent pour m'enseigner, me guider, me conseiller et faire fonctionner les choses alors que tout espoir été perdu (grâce à la poudre de Mary Poppins). Je remercie également Tarik Bourouina pour avoir accepté de m'encadrer au début de cette aventure et qui a par la suite toujours su se montrer présent dans des phases critiques.

Je voudrais ensuite à remercier toutes les personnes que j'ai pu côtoyer au cours de ces trois années à commencer par mes "Mamans de l'ESIEE", Sylvie et Marie-Laure qui ont toujours été présentes pour moi, qui m'ont aidé à grandir tout le long de cette expérience et qui m'ont apporté leur soutien jusqu'à la fin. Je remercie également les collègues du département SMM, Serge, Pascal, Lionel R, Bruno C, Fred M, Prince K dont les conversations et les conseils ont été très stimulants et m'ont redonné de l'énergie pour avancer. Je remercie également Nico pour le travail remarquable qu'il a réalisé en salle blanche pour fabriquer les dispositifs. Je tiens également à remercier les collègues du département électronique, Gaëlle dont les conseils et les discussions ont été à la fois formateurs et réconfortants notamment dans la dernière ligne droite de cette thèse, Ludovic, Farbode, les enseignants du département, Gilles, Laurie, Laure, Lionel B, Anne, Nasser, Corinne, Patrick pour m'avoir apporté leur aide lorsque les imprimantes et autres matériels ne se souciaient plus de mon sort. Je tiens à remercier très chaleureusement Laurent pour sa bonne humeur constante et son accent qui chante ses barbecues et ses remèdes rangés dans sa valise de docteur, Lionel Bougriot pour ses tapes derrière la tête quand je ne disais pas "s'il vous plait". Sans oublier les personnes qui traitaient les données administratives Sylvie C, Martine E, Sabrina, Stéphanie, JB, Julie mais aussi nos amis du SMIG, Jeannine, Jean-Pierre (vavavroum!!), Franck, Agnès. Je remercie également nos partenaires de la poste pour tous ces instants sportifs passés dans la bonne humeur sur le terrain de badminton avec qui nous avons partagé bien plus que de la sueur.

Je tenais à remercier l'équipe des anciens/nouveaux thésard(e)s à commencer par les deux autres membres du trio infernal : Jules et Raph avec qui j'ai passé d'excellents moments notamment dans notre bureau (anciennement un terrain de tennis et salle de concert), tout ça va en effet me manquer, vraiment. Je remercie aussi Sebastian et William pour leur aide précieuse qui a contribué en grande partie à la réalisation de ces travaux. Je remercie aussi Myline, Sebastien pour leur soutien et leurs encouragements.

J'ai la chance d'avoir été entouré par des amis chers, présents depuis de nombreuses années et qui

ont su être à mes côtés pour me supporter pendant ces trois années de thèse et que je voudrais remercier très chaleureusement, à commencer par Vince, Damien et Thomas A les frères que je n'ai jamais eu, les Tatavs, le groupe de Caen (tite Claire, No, Alex, Axel, Flo, Mika, Bolide, Delik, Savy), Juliette et Mathieu, sans oublier les thésards et jeunes docteurs de l'ISIR (incluant les 7 de Bormes) pour les soirées "ambuscade de Caen" les sorties Disney et les soirées MJ Experience.

Enfin, je souhaiterais remercier très chaudement ma famille, notamment ma mère et ma sœur, pour avoir su me porter et m'encourager depuis toujours et tout particulièrement pendant la dernière ligne droite de cette thèse. Je voudrais également témoigner toute mon affection à mes grands parents et à ma grand mère du Sud pour avoir su m'insuffler suffisamment de courage pour aller jusqu'au bout de cette aventure.

(ça y est Maman, je l'ai fini mon truc !)

RÉSUMÉ

Cette thèse porte sur la création et la caractérisation *in situ* de fluides complexes en géométrie confinée. L'objectif est de réaliser des systèmes capables de générer et de caractériser d'un point de vue rhéologique, *in-situ*, des fluides complexes, comme des dispersions biphasiques (émulsions, mousses), ou encore des mélanges de fluides de viscosité variable.

La génération de mousses et d'émulsions par des microsystèmes présente des applications importantes dans l'agro-alimentaire, la cosmétique et constitue un domaine de recherche très enclin dans le secteur de la santé et de la médecine. Une première partie de cette thèse se concentre sur la réalisation et la modélisation d'un nouveau microgénérateur permettant de créer des dispersions avec un diamètre en deçà de $10\mu\text{m}$ et un coefficient de variation proche de 1% (performances situées à l'état de l'art). La géométrie particulière de notre dispositif et le choix optimal de paramètres expérimentaux (gaz, surfactant, viscosité du fluide) permettent une évacuation avec une très faible altération des bulles/gouttes générées, avec une variation du diamètre moyen en sortie du dispositif de l'ordre de 3%.

Après avoir maîtrisé la production de ces fluides complexes stables, nous avons réalisé un microrhéomètre afin de tenter l'étude de la rhéologie de tels fluides. Ce dispositif utilise une jauge piezorésistive intégrée sur puce (transducteur MEMS) comme capteur de pression différentielle, afin de mesurer les contraintes de cisaillement imposées sur le fluide. La déflexion que subit cette jauge lorsqu'elle est soumise à une pression induite par le débit du fluide permet de retranscrire le comportement de ce fluide. Ce microrhéomètre présente de nombreux points positifs liés à sa taille très réduite tels que le faible volume de liquide requis par expérience, la réduction des volumes morts, une géométrie des canaux permettant d'atteindre de forts taux de cisaillement ou encore son coût de fabrication restreint, qui le rendent particulièrement intéressant par rapport à des rhéomètres classiques. La caractérisation de ce dispositif nous a amené à employer plusieurs méthodes d'envoi contrôlé du fluide (contrôle indépendant du débit ou de la pression), ainsi que l'utilisation de plusieurs types de fluides (newtoniens et non newtoniens) révélant des résultats en adéquation avec nos attentes théoriques.

Cette caractérisation nous a également amené à utiliser un micromélangeur dans le but de générer des fluides à viscosités variables que nous avons mesuré à l'aide du microrhéomètre. Cela nous a permis de vérifier rapidement, dans une expérience de type *high-throughput*, des résultats obtenus par des tiers avec des moyens classiques de laboratoire, publiés dans la littérature. Le système que nous avons développé se rend extrêmement utile à l'étude des viscosités des mélanges de fluides dissimilaires, offrant un outil versatile à ce champs de recherche qui reste essentiellement empirique.

Enfin, nous avons réalisé un nouveau type de microrhéomètre pourvu d'un générateur de fluides complexes intégré. Cependant, suite à des problèmes techniques dus à la fabrication de nos dispositifs, l'étude de la rhéologie des dispersions générées *in-situ* n'a pas pu être réalisée au cours de cette thèse. Ces travaux ont néanmoins permis d'optimiser la géométrie et de définir des procédés fiables de fabrication, ce qui ouvrira des perspectives très intéressantes dans un avenir proche, afin de réaliser des systèmes complètement intégrés pour l'étude des dispersions de différents types.

MOTS-CLES : Microfluidique, géométrie confinée, systèmes intégrés, MEMS, micromélangeur, microgénérateur, mousse, émulsion, fluides complexes, viscosité de mélange, rhéologie.

TABLE DES MATIÈRES

Introduction générale	12
1 Microfluidique - Notions de base - Etat de l'art	17
1.1 Microfluidique - Notions et principes	18
1.1.1 Introduction	18
1.1.2 Concepts généraux de microfluidique	18
1.1.2.1 Loi d'échelle	18
1.1.2.2 Notions de viscosité	19
1.1.2.3 Equation de Navier-Stokes	20
1.1.2.4 Ecoulement de Stokes	20
1.1.3 Analogie entre la microfluidique et l'électronique	22
1.1.3.1 Corrélation entre grandeurs physiques	22
1.1.3.2 Lois de Kirchhoff	23
1.1.3.3 Echauffement thermique	24
1.1.4 Mousses et émulsions - Notions de base	24
1.1.4.1 La mousse et son évolution au cours du temps	24
1.1.4.2 Gouttes et émulsions	26
1.1.4.3 Définition et impact d'un surfactant	26
1.1.5 Mélange de fluides	27
1.1.5.1 Lois de diffusion	27
1.1.5.2 Application	27
1.1.6 Conclusion	29
1.2 Microgénérateurs de mousse et d'émulsion	30
1.2.1 Introduction	30
1.2.2 T-junction	30
1.2.3 Flow-focusing	31
1.2.4 Réseaux de microcanaux	32
1.2.5 Conclusion	32
1.3 Rhéomètres adaptés à la microfluidique	34
1.3.1 Introduction	34
1.3.2 Viscosimètres capillaires	34
1.3.3 Rhéomètres rotatifs	34
1.3.3.1 Cellule de Couette	35
1.3.3.2 Rhéomètres Plan-plan et Cône-plan	35
1.3.3.3 Limitations	36
1.3.4 Adaptation de rhéomètres avec partie mobile à la microfluidique	37
1.3.5 Rhéomètres et viscosimètres capillaires microfluidiques	38
1.3.5.1 Viscosimètre capillaire	38
1.3.5.2 Rhéomètre et capteurs de pression	39
1.3.5.3 Viscosimétrie à forts taux de cisaillement	39
1.3.6 Conclusion	40
1.4 Micromélangeurs	41

1.4.1	Classification des micromélangeurs	41
1.4.2	Micromélangeurs passifs	41
1.4.2.1	Laminage en parallèle	41
1.4.2.2	Laminage séquentiel	42
1.4.2.3	Micromélangeurs à base de gouttes	43
1.4.3	Micromélangeurs actifs	44
1.4.3.1	Instabilité électrocinétique	44
1.4.3.2	Mélanges de gouttes par électromouillage	45
1.4.4	Conclusion	46
2	Mousse et émulsion - Fabrication d'un nouveau microgénérateur.	47
2.1	Introduction	48
2.2	Conception des microgénérateurs	48
2.2.1	Description des géométries	48
2.2.2	Principe de production	48
2.3	Réalisation des dispositifs	49
2.4	Caractérisation des dispositifs	50
2.4.1	Protocole expérimental	50
2.4.1.1	Acquisition des images	50
2.4.1.2	Sites d'observations	51
2.4.1.3	Préparation des solutions dans le cas des émulsions	52
2.4.1.4	Préparation des solutions dans le cas des mousses	53
2.4.2	Production d'émulsion : comparaison entre les deux géométries	53
2.4.3	Production de mousses : comparaison entre les deux géométries	55
2.5	Stabilisation des mousses générées - Variations des paramètres expérimentaux	57
2.6	Modèle semi-empirique de production	59
2.6.1	Principe de fabrication d'une bulle	59
2.6.2	Influence de la géométrie lors de la création d'une bulle	62
2.6.3	Modèle semi-empirique de génération d'une bulle	64
2.7	Conclusion	66
3	Microrhéomètre MEMS	69
3.1	Développement du microrhéomètre	70
3.1.1	Présentation du dispositif	70
3.1.2	Performances théoriques du système	72
3.1.3	Réalisation du microrhéomètre	74
3.2	Méthode de caractérisation	76
3.2.1	Electronique de conditionnement	76
3.2.2	Mesure de température - Capteur piezorésistif intégré	77
3.2.3	Méthode de pré-remplissage	80
3.2.4	Coefficient de calibration	82
3.2.5	Temps de réponse du système	87
3.2.6	Protocole analytique - détermination des courbes d'écoulement	90
3.3	Mesures à débits contrôlés	92
3.3.1	Mesures avec des fluides newtoniens	92
3.3.2	Mesures avec des fluides non-newtoniens	96
3.4	Mesures à pression contrôlée	100
3.4.1	Modification du protocole expérimental	100
3.4.2	Modèle mathématique d'approximation des courbes expérimentales.	102
3.4.3	Mesures avec des fluides newtoniens	104
3.4.4	Mesures avec des fluides non-newtoniens	105
3.5	Conclusion	107
4	Application à l'étude de la viscosité d'un mélange	109

4.1	Introduction	110
4.2	Fabrication du micromélangeur	110
4.3	Principe de fonctionnement du mélangeur	112
4.4	Mesure d'efficacité du mélange	113
4.4.1	Protocole expérimental	113
4.4.2	Mesures de calibration	114
4.4.3	Efficacité du micromélangeur.	114
4.4.4	Solutions à base de glycérol.	116
4.5	Association du mélangeur et du rhéomètre - Mesures de viscosités variables	129
4.5.1	Mesures à débits contrôlés.	129
4.5.2	Mesures à pression contrôlée.	132
4.6	Conclusion	133
Conclusion et Perspectives		135
Annexes		144
A Eléments de précision - Capteur de pression		145
A.1	Capteurs piezorésistif - Principe et théorie	145
A.2	Matériaux adaptés aux capteurs	149
A.2.1	Jauge de contraintes	149
A.2.1.1	Application du pont de Wheatstone - Positionnement des résistances	149
A.2.1.2	Déformation d'une membrane	151
A.2.2	Mesure de température intégrée	151
B Principe de fonctionnement de la jauge piezorésistive		155
Table des figures		157
Bibliographie		165

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Depuis plusieurs décennies, l'étude des fluides à l'échelle microscopique (microfluidique) connaît un essor considérable. Définie comme "la science et la technologie des systèmes qui manipulent de petits volumes de fluides" [1], la microfluidique est devenue un outil de plus en plus présent dans notre quotidien.

Dans les années 1960 les premiers circuits intégrés sont apparus. Utilisant des procédés de fabrication similaires, plusieurs autres dispositifs ont alors pu être fabriqués tels que des poutres, des valves, des canaux fluidiques et autres structures à base de silicium. Durant les années 1970, la course à la miniaturisation des systèmes a permis la fabrication de puces intégrant des éléments mécaniques mobiles pour finalement prendre le nom de MEMS (micro electro mechanical system) vers la fin des années 1980. Dans les années 1990, la prolifération des MEMS touchait de nombreux secteurs d'activités donnant ainsi naissance à des bio-MEMS, MEMS- RF, MEMS optiques ou encore microfluidiques. Sont également apparus au cours de cette décennie les premiers circuits microfluidiques réalisés en poly dimethyl siloxane (PDMS). Facile à réaliser et peu coûteux ils présentent néanmoins quelques inconvénients dans des applications ciblées tels que les aspects d'incompatibilité chimique, de perméabilité et/ou d'élasticité des systèmes. Grâce à leur structure rigide et à la compatibilité du silicium avec de nombreux fluides, les MEMS permettent de palier aux verrous liés au silicium.

Dès lors, les systèmes d'analyses des fluides ont pu être miniaturisés, ce qui a permis de manière générale de limiter la quantité des échantillons à tester, de favoriser des techniques d'observation en temps réel, de diminuer les coûts et les temps de mesures et d'avoir une meilleure compréhension des phénomènes physiques. Cet engouement dans la réalisation de microsystèmes fluidiques s'est considérablement diversifiée et couvre à aujourd'hui de nombreux domaines d'applications [2]-[3]. On retrouve l'usage de puces microfluidiques dans le secteur de **la santé-médecine** où les techniques de microfabrication permettent de réaliser des laboratoires sur puce ou encore des dispositifs de diffusion de médicaments [4] (micropompes à insulines [5], encapsulation de médicaments [6]). Dans le milieu de la **biologie**, les systèmes microfluidiques sont utilisés comme support dans l'analyse de cellules [7]-[8]. L'ingénierie tissulaire, dont l'objectif ultime est de pouvoir créer des organes et des tissus à greffer [9], est également un milieu en pleine expansion. Les microsystèmes fluidiques sont aussi très prisés pour leurs applications dans les tests immunologiques [10] ou encore pour l'analyse de l'ADN [11] avec notamment l'amplification de la chaîne ADN par PCR (polymerase chain reaction) sur puce, à l'aide de microgouttes [12]. Dans le secteur de **l'agro alimentaire**, les dispositifs sont employés dans la détection de toxines dans des échantillons de viandes. Récemment, les systèmes microfluidiques ont permis d'avoir une nouvelle approche pour réaliser des huiles végétales afin de produire du biocarburant [13].

Chacune de ces applications requiert bien évidemment toute sorte de fluides et dans certaines circonstances de fluides dits complexes. L'intérêt de ces fluides porte d'une part sur leurs propriétés mécaniques, leur écoulement et notamment sur leur rhéologie. Leurs propriétés font l'objet de plusieurs travaux de recherche dans le milieu académique [14], où l'étude se porte sur leur comportement dans différentes géométries. Ces fluides sont également très prisés dans le milieu industriel pour leurs propriétés physiques très intéressantes notamment dans les produits cosmétiques (fer-

meté des mousses de rasage, texture des crèmes pour le visage), les aliments (mousse au chocolat, mayonnaise) ou encore dans certaines huiles de moteur enrichies en additifs polymériques. L'étude des propriétés intrinsèques de ces fluides a donc créé un besoin en terme de microcapteurs bas coût capables d'étudier leur rhéologie. Cette quête de miniaturisation des capteurs a suscité un fort engouement aussi bien dans le milieu industriel que dans le milieu académique imposant une demande toujours plus précise des compétences des microcapteurs. Les aptitudes de ces derniers doivent être étendues avec des mesures de plus en plus précises, imposant une pluridisciplinarité accrue, des dimensions caractéristiques à l'échelle du micromètre, et un coût limité.

Au cours des travaux menés lors de cette thèse, nous avons tenté de répondre en partie à ces attentes en réalisant de manière séparée, un microgénérateur de mousse et d'émulsion ainsi qu'un microrhéomètre basé sur un transducteur MEMS. A terme, l'objectif est de réunir ces deux dispositifs sur une seule et même puce afin de pouvoir créer des fluides complexes *in situ* tels que des mousses et émulsions ou encore des mélanges de fluides (issus d'un micromélangeur) et d'en étudier la rhéologie. Notre approche est la suivante : dans un premier temps on réalisera un générateur de fluides complexes (mousses et émulsions) afin de comprendre les aspects physiques et géométriques liés à la création de dispersions en vue de fabriquer des bulles/gouttes monodisperses et stables. Plusieurs méthodes sont rapportées dans la littérature pour générer des dispersions [15]-[16] avec notamment les travaux de Sugiura et al. [17] qui proposent une méthode basée sur un réseau de microcanaux. Cette technique implique une transition du fluide envoyé sous forme 2D (crêpe) vers une forme 3D (goutte). Nos travaux, en terme de réalisation d'un microgénérateur, se baseront sur cette méthode de production et proposeront une géométrie particulière qui permettra de conserver les dispersions créées à l'intérieur du dispositif avant d'être évacuées par un canal de sortie. Nous réaliserons deux géométries de ce canal, la première sera de forme droite et la seconde adoptera une géométrie fractale formant un réseau de microcanaux dirigés vers la sortie. Une approche statistique quantitative basée sur l'utilisation d'une caméra rapide couplée à un microscope, permettra d'observer les différents phénomènes de mûrissement et de coalescence des bulles/gouttes générées, liés à la géométrie du canal d'évacuation du générateur. Cette étude permettra de mettre en avant de meilleurs résultats en terme de monodispersité liés à la nature de la géométrie fractale. Par la suite nous proposerons une analyse qualitative basée sur un modèle semi-quantitatif de création d'une bulle, impliquant les paramètres géométriques du site de production, la viscosité du fluide de la phase continue, la tension de surface et le volume de gaz injecté dans une bulle. Ce modèle permettra de comprendre les principales tendances observées au cours des expériences et notamment les subtilités liées à la production de mousses dans de tels dispositifs. L'objet de ces travaux sera rapporté pour la première fois dans la littérature [18].

Après avoir maîtrisé les différents paramètres pour générer des dispersions stables, nous réaliserons un microrhéomètre qui permettra d'étudier de façon à part entière la rhéologie de fluides newtoniens et non-newtoniens. Les travaux de Angelescu et al. [19] ont permis de réaliser un microdispositif intégrant un capteur de pression microfluidique basé sur un transducteur MEMS et un capteur de débit volumique basé sur des éléments chauffants permettant de déduire le temps de vol du fluide d'un élément à l'autre. Dans cette thèse, nous nous inspirerons de la technologie utilisée pour concevoir de façon analogue le capteur de pression, afin d'intégrer sur une puce une jauge de pression différentielle, une jauge de pression totale et une piezorésistance RTD. La géométrie et le confinement de l'écoulement dans les microcapillaires permettent d'atteindre des taux de cisaillement supérieurs aux instruments classiques. Dans un rhéomètre cône-plan par exemple, lorsque le taux de cisaillement atteint une valeur trop importante, le fluide se retrouve expulsé à cause de la force centrifuge. Dans le cas d'une géométrie confinée, ce phénomène ne peut donc pas exister, ce qui nous donne la possibilité d'atteindre des taux de cisaillement d'environ 8.10^4s^{-1} avec un volume de liquide très faible (de l'ordre de 2mL). En outre, ce volume est suffisant pour balayer une large gamme de taux de cisaillement pour chaque expérience. Au cours de cette caractérisation, nous proposerons deux méthodes d'injection du fluide, la première à l'aide d'un pousse seringue (débit contrôlé), la seconde à l'aide d'un dispositif sous pression contenant le fluide à envoyer (pression contrôlée) et dont le débit sera mesuré à l'aide d'une balance analytique en sortie de dispositif. La

seconde méthode permettra de définir un modèle mathématique des courbes de pression et de taux de cisaillement obtenus lors des expériences. Avec ces deux méthodes, nous étudierons le comportement rhéologique de fluides newtoniens (dodécane, hexadécane et différents types de standards de viscosité à base d'hydrocarbures) et de fluides non-newtoniens (solutions de polyisobutylène (PIB)).

Après avoir caractérisé ce dispositif, nous proposerons une section applicative du rhéomètre qui permettra de mettre en œuvre une étude sur la mesure d'un fluide à viscosité variable, généré à partir d'un micromélangeur. Situé dans la catégorie des micromélangeurs passifs, ce dispositif se base sur une technique de mélange par laminage séquentiel. Les cellules vont imposer une séparation puis une re-combinaison du flux contenant les fluides à mélanger, ce qui aura pour conséquence de diminuer la longueur de diffusion et ainsi le temps nécessaire pour réaliser un mélange complet. Le mélange final sera directement injecté dans le microrhéomètre afin d'y mesurer la viscosité. Lors de cette étude, nous emploierons les deux méthodes d'injection du liquide utilisées lors de la caractérisation du rhéomètre (débit et pression contrôlés).

Enfin, le générateur de fluides complexes et le microrhéomètre seront réunis en un seul et même dispositif permettant l'étude *in situ* de la rhéologie de fluides complexes. Les résultats de cette étude ne seront pas disponibles dans cette thèse à cause de difficultés techniques survenues pendant la réalisation, rendant cette première version du dispositif inexploitable. Toutefois, l'ensemble des tests réalisés nous a permis de définir de nouveaux procédés de fabrication pour une seconde version, qui permettront de palier aux problèmes rencontrés. L'intégration *in-situ* de la production et de la caractérisation de fluides complexes sur puce ouvre de larges perspectives qui se poursuivront à la suite des travaux réalisés dans le cadre de cette thèse.

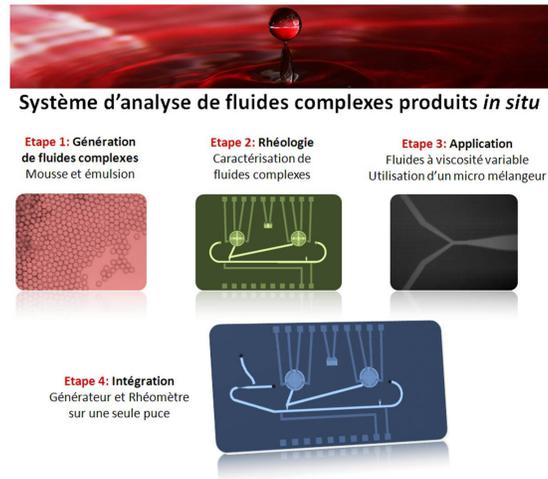


FIGURE 0.1 – Présentation des tâches réalisées au cours de cette thèse pour la génération et la caractérisation de fluides complexes.

Le déroulement de ce manuscrit se fera de la manière suivante :

Chapitre 1 : consacré aux outils mathématiques et aux lois de la microfluidique qui vont permettre d'appréhender la modélisation des systèmes utilisés au cours de cette étude ainsi que l'état de l'art sur les microsystèmes liés à la réalisation de notre dispositif à savoir, les générateurs de dispersions, les microrhéomètres et enfin les micromélangeurs .

Chapitre 2 et 3 : présentation des dispositifs réalisés au cours de cette thèse en terme de conception, de réalisation et de caractérisation comprenant un générateur d'émulsion et de mousse (**Etape1** de la figure 0.1) et un microrhéomètre sur puce (**Etape2** de la figure 0.1).

Chapitre 4 : application du microrhéomètre avec un micromélangeur (**Etape3** de la figure 0.1). Présentation d'un système complet pour la mesure *high-throughput* de la viscosité de différents mélanges eau-glycérol.

Le système intégrant sur une seule puce le générateur de fluides complexes et le microrhéomètre (**Etape4** de la figure 0.1) n'ayant malheureusement pas montré de résultats satisfaisants dans sa première version, nous ne présenterons ici (dans les **Perspectives**) qu'un bref aperçu de sa conception et des tous premiers résultats en terme de génération de dispersions. Nous nous intéresserons particulièrement sur les différents problèmes rencontrés, et sur les solutions à apporter pour la prochaine version.

MICROFLUIDIQUE - NOTIONS DE BASE - ETAT DE L'ART

Sommaire

1.1	Microfluidique - Notions et principes	18
1.1.1	Introduction	18
1.1.2	Concepts généraux de microfluidique	18
1.1.3	Analogie entre la microfluidique et l'électronique	22
1.1.4	Mousses et émulsions - Notions de base	24
1.1.5	Mélange de fluides	27
1.1.6	Conclusion	29
1.2	Microgénérateurs de mousse et d'émulsion	30
1.2.1	Introduction	30
1.2.2	T-junction	30
1.2.3	Flow-focusing	31
1.2.4	Réseaux de microcanaux	32
1.2.5	Conclusion	32
1.3	Rhéomètres adaptés à la microfluidique	34
1.3.1	Introduction	34
1.3.2	Viscosimètres capillaires	34
1.3.3	Rhéomètres rotatifs	34
1.3.4	Adaptation de rhéomètres avec partie mobile à la microfluidique	37
1.3.5	Rhéomètres et viscosimètres capillaires microfluidiques	38
1.3.6	Conclusion	40
1.4	Micromélangeurs	41
1.4.1	Classification des micromélangeurs	41
1.4.2	Micromélangeurs passifs	41
1.4.3	Micromélangeurs actifs	44
1.4.4	Conclusion	46

1.1 Microfluidique - Notions et principes

1.1.1 Introduction

Les dimensions atteintes dans les systèmes réalisés par les méthodes de la microfabrication en salle blanche se situent à l'échelle micrométrique. Les lois de la physique à l'échelle humaine ne s'appliquent donc pas de la même manière dans le domaine de la microfluidique. Les phénomènes liés notamment aux lois d'échelle, c'est à dire aux variations relatives des grandeurs physiques liées à la taille du système, sont essentiels pour comprendre pourquoi par exemple, les effets capillaires ou visqueux prédominent sur la gravité. Avant toute présentation des travaux réalisés au cours de cette thèse, nous devons considérer l'ensemble des phénomènes liés à la dynamique d'un fluide dans une géométrie confinée, l'évolution temporelle d'une mousse et d'une émulsion et enfin la diffusion entre deux fluides lors d'un mélange.

Dans cette section, nous aborderons donc ces thématiques afin d'avoir une approche théorique globale des lois et des phénomènes physiques, parfois contre-intuitifs, à cette échelle. Plusieurs ouvrages [20]-[21]-[22], éléments de cours [23]-[24] et revues [25] ont inspiré l'écriture de cette section.

1.1.2 Concepts généraux de microfluidique

1.1.2.1 Loi d'échelle

Le fait de travailler à une échelle micrométrique, les phénomènes physiques côtoyés dans la vie courante n'ont plus cours à ces dimensions. Certains vont se voir extrêmement réduits tandis que d'autres vont être amplifiés jusqu'à devenir prépondérants.

TABLE 1.1 – Effets dominants dans les grandeurs physiques.

Grandeurs physiques	Effet dominant
Surface	l^2
Volume	l^3
Temps	T
Vitesse	$l.T^{-1}$
Masse	l^3
Force de gravité	l^3
Force de capillarité	l

C'est en effet le cas de la gravité qui devient négligeable à cette échelle au profit de la capillarité. En effet, si l'on regarde les effets dominants (tableau 1.1) dans ces deux grandeurs physiques, on constate que la force de gravité $F_g \propto l^3$ et la force capillaire $F_c \propto l$. Ainsi, à l'échelle du micromètre, la force de gravité se retrouve très inférieure à la force capillaire qui devient prédominante.

Capillarité

Les phénomènes capillaires se traduisent généralement par la pression capillaire, également appelée pression de Laplace. Celle-ci exprime la différence de pression ΔP entre deux phases (liquide-gaz par exemple) liée à la tension de surface. La tension de surface notée σ est définie comme l'énergie par unité de surface pour pouvoir créer l'interface entre deux phases et s'exprime en J/m^2 ou plus communément en N/m . L'ordre de grandeur typique est la dizaine de mN/m (environ $72mN/m$ pour une interface eau/air).

Prenons le cas d'une goutte qui se forme au bout d'une aiguille d'une seringue (figure 1.1). Lorsque le pousse-seringue envoi du fluide dans la goutte, celle-ci voit son rayon s'accroître d'une quantité dR .

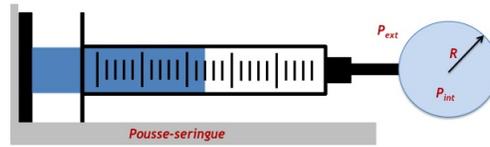


FIGURE 1.1 – Goutte formée par l'envoi de fluide à travers une seringue.

On peut alors écrire que :

$$(P_{int} - P_{ext})d\left(\frac{4}{3}\pi R^3\right) = \sigma d(4\pi R^2) \quad (1.1)$$

avec P_{int} et P_{ext} respectivement la pression à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte. Il en résulte donc :

$$\Delta P = P_{int} - P_{ext} = \frac{2\sigma}{R} \quad (1.2)$$

La différence de pression évolue donc selon l'inverse du rayon de la goutte, ce qui signifie que plus la goutte est petite, plus la pression à l'intérieur est élevée. La surface minimale de cette interface pour un volume est une sphère, ce qui explique pourquoi les gouttes d'eau (ou de whisky) sont sphériques.



FIGURE 1.2 – Hergé, "On a marché sur la lune".

1.1.2.2 Notions de viscosité

La viscosité est le paramètre qui relie le gradient de vitesse aux efforts exercés sur un fluide lorsque ce dernier est soumis à un cisaillement. Un exemple simple est représenté figure 1.3 où un fluide incompressible, situé entre deux plaques, est soumis à un cisaillement simple plan.

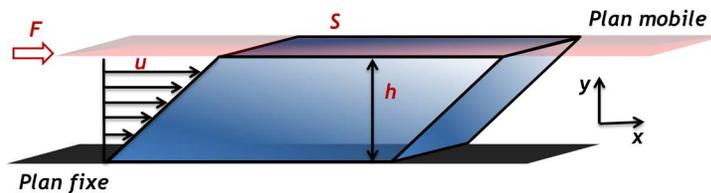


FIGURE 1.3 – Fluide incompressible soumis à un cisaillement plan.

F représente la force appliquée sur le plan mobile et qui est tangentielle à la surface S du fluide. La contrainte de cisaillement est définie par $\sigma = F/S$. Cette contrainte sur le fluide va provoquer une déformation du fluide appelée déformation de cisaillement, notée γ . Comme indiqué sur la figure 1.3 (flèches noires indiquant le déplacement u du fluide selon x), la déformation d'un fluide suit une évolution linéaire caractérisée par $\gamma = \partial u / \partial y$. On peut alors définir un gradient de vitesse, également appelé taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, où ce dernier est la dérivée temporelle de la déformation de cisaillement. Le taux de cisaillement est donc défini par $\dot{\gamma} = \partial v_x / \partial y$ où v_x est la vitesse du fluide selon la direction x .

Par définition, la viscosité notée η , est le ratio entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement $\eta = \sigma / \dot{\gamma}$. Lorsque la contrainte de cisaillement évolue de façon linéaire en fonction du taux de cisaillement, on dit que le fluide est newtonien, sa viscosité reste constante quelle que soit son taux de cisaillement. Cependant il existe des fluides dits non-newtoniens qui eux, ont une viscosité qui peut croître ou décroître lorsque l'on accroît le taux de cisaillement. On parlera alors respectivement de fluides rhéoépaississants et rhéofluidifiants.

1.1.2.3 Equation de Navier-Stokes

L'équation de Navier-Stokes permet de décrire le mouvement d'un fluide, et découle du principe fondamental de la dynamique de Newton. Dans le cas d'un fluide newtonien incompressible (dont la densité et la viscosité restent constantes dans le temps et l'espace), l'équation de Navier-Stokes est définie par :

$$\rho \frac{D\mathbf{v}}{Dt} = -\nabla P + \mathbf{f}_{ext} + \eta \Delta \mathbf{v} \quad \text{avec} \quad \frac{D\mathbf{v}}{Dt} = \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} \right) \quad (1.3)$$

où $D\mathbf{v}/Dt$ est la dérivée convective, \mathbf{v} est le vecteur vitesse du fluide, P est la pression, \mathbf{f}_{ext} les forces extérieures qui agissent sur le fluide et η la viscosité du fluide. Prenons à présent les échelles caractéristiques du système dans lequel L_c est la longueur caractéristique (généralement définie par le diamètre du canal microfluidique), v_c la vitesse caractéristique du fluide (généralement celle imposée en entrée du canal), t_c le temps caractéristique obtenu par le ratio L_c/v_c et enfin p_c la pression caractéristique définie par $\eta v_c/L_c$. On définit les variables adimensionnelles et opérateurs mis à l'échelle : $v_s = v/v_c$, $t_s = t/t_c$, $p_s = p/p_c$, $\nabla_s = L_c \nabla$ et $\Delta_s = L_c^2 \Delta$. L'équation 1.3 se réécrit alors :

$$\rho \left(\frac{v_c}{t_c} \frac{\partial \mathbf{v}_s}{\partial t_s} + \frac{v_c^2}{L_c} (\mathbf{v}_s \cdot \nabla_s) \mathbf{v}_s \right) = -\frac{p_c}{L_c} \nabla_s P_s + \frac{\eta v_c}{L_c^2} \Delta_s \mathbf{v}_s \quad (1.4)$$

Après simplification, l'équation 1.4 devient :

$$Re \left(\frac{\partial \mathbf{v}_s}{\partial t_s} + (\mathbf{v}_s \cdot \nabla_s) \mathbf{v}_s \right) = -\nabla_s P_s + \Delta_s \mathbf{v}_s \quad (1.5)$$

faisant apparaître le facteur Re , appelé nombre de Reynolds, qui permet de quantifier la prédominance du terme inertiel par rapport au terme visqueux et qui est donné par la relation suivante :

$$Re = \frac{\rho v_c L_c}{\eta} \quad (1.6)$$

Ce nombre permet entre autre de distinguer plusieurs types d'écoulement. Pour $Re < 1$ on parlera d'écoulement laminaire visqueux, $Re < 2000$ écoulement laminaire et enfin, $Re > 2000$ l'écoulement sera dit turbulent. Ainsi plus Re est grand et plus les effets inertiels sont dominants sur les effets visqueux.

Prenons l'exemple d'un canal microfluidique typique, de section rectangulaire avec une hauteur h de $75 \mu m$, une largeur w de $200 \mu m$ et une longueur L de $0.8 mm$ (géométrie approximative du micro-rhéomètre utilisé dans la thèse). Dans le cas de l'eau, la viscosité η de ce fluide est d'environ $1 mPa \cdot s$ à température ambiante et sa masse volumique ρ est d'environ $10^3 kg/m^3$. On choisira un débit caractéristique de $1 \mu L/min$ soit une vitesse moyenne d'écoulement de $1.11 \cdot 10^{-3} m/s$ et une longueur caractéristique égale au diamètre hydraulique équivalent. Le diamètre hydraulique équivalent défini par $D_h = 4S/P$ (où S est la surface et P le périmètre du canal microfluidique) permet d'avoir une approximation du diamètre d'une section cylindrique équivalente pour une géométrie rectangulaire ($L_c \approx 109 \mu m$). En appliquant la formule donnée par l'équation 1.6, il en résulte un nombre de Reynolds $Re=0.12$, inférieur à 1. L'écoulement du fluide est donc de type laminaire visqueux.

1.1.2.4 Ecoulement de Stokes

Dans le cas où Re est inférieur à 1 (cas typique de la microfluidique), les effets inertiels (partie gauche de l'équation 1.5) peuvent être ignorés comme suit :

$$\nabla_s P_s = \Delta_s \mathbf{v}_s \quad (1.7)$$

En remplaçant les termes mis à l'échelle par les grandeurs physiques précédemment décrites, on obtient une forme simplifiée de l'équation 1.5 de Stokes :

$$\nabla P = \frac{p_c L_c}{v_c} \Delta \mathbf{v} = \eta \Delta \mathbf{v} \quad (1.8)$$

Dans la résolution de cette équation, on choisit généralement dans le cas des liquides, des conditions limites aux parois où la vitesse est considérée nulle ($v|_{\text{parois}} = 0$). Par ailleurs, l'équation de conservation de la masse est également utilisée :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (1.9)$$

Dans le cas d'un fluide incompressible la densité ρ est constante, l'équation 1.9 se simplifie et se réduit à :

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1.10)$$

Ainsi l'équation de Stokes (équations 1.7 ou 1.8) peut se résoudre selon la géométrie dans laquelle circule le fluide. Par la suite nous présenterons les formules les plus usitées dans des géométries courantes (circulaires et rectangulaires) dont nous ferons usages par la suite.

Écoulement dans une géométrie cylindrique

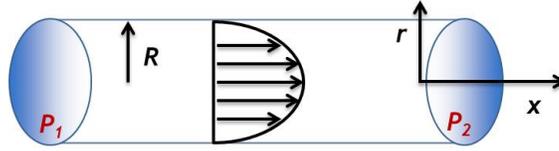


FIGURE 1.4 – Profil de vitesse d'un fluide incompressible dans une géométrie cylindrique.

Le profil de vitesse du fluide à l'intérieur d'un canal cylindrique (figure 1.4) peut être déterminé à l'aide de l'équation de Stokes (équation 1.8). La solution apparaît alors comme étant égale à :

$$v(r) = \frac{\partial_x P}{4\eta} (r^2 - R^2) \quad (1.11)$$

où le gradient de pression s'exprime par :

$$-\frac{\partial P}{\partial x} = \frac{P_1 - P_2}{L} \quad (1.12)$$

avec P_1 et P_2 respectivement la pression en entrée et en sortie du canal et L sa longueur. Le débit volumique Q du fluide peut alors être déterminé comme suit :

$$Q = \int_0^R v(r) 2\pi r \cdot dr = \frac{\pi R^4}{8\eta L} (P_1 - P_2) \quad (1.13)$$

Comme nous le verrons dans la section 1.1.3, $R = \Delta U / I$ pour les circuits électriques (où ΔU est la différence de potentiel entre l'entrée et la sortie du montage, R la résistance électrique et I le courant électrique) on peut identifier la relation analogue pour les circuits microfluidiques où $R_h = \Delta P / Q$ (avec Q le débit volumique, R_h la résistance hydrodynamique et $\Delta P = P_1 - P_2$). Le terme correspondant à la résistance peut alors être identifié comme suit :

$$R_h = \frac{8\eta L}{\pi R^4} \quad (1.14)$$

Écoulement dans une géométrie rectangulaire

Dans le cas d'une géométrie rectangulaire, de largeur w , de hauteur h et de longueur L , la résolution de l'équation de Stokes est beaucoup plus compliquée. Une solution pour la résistance

hydrodynamique a été déterminée [21] dont le calcul s'effectue grâce aux séries de Fourier. Cependant il est possible de définir une approximation donnée par l'équation 1.15, laquelle a une précision d'environ 1% lorsque $h/w < 0.7$ [26].

$$R_h = \frac{12\eta L}{wh^3 \left(1 - 0.63 \frac{h}{w}\right)} \quad (1.15)$$

1.1.3 Analogie entre la microfluidique et l'électronique

1.1.3.1 Corrélation entre grandeurs physiques

A bien des égards la microfluidique et l'électronique sont liées. Dans le cas d'un écoulement laminaire, la relation $\Delta P = R_h \cdot Q$ peut être identifiée à la loi d'Ohm en électricité $U = R \cdot I$ (comme indiqué section 1.1.2.4). D'une manière plus générale (toujours dans le cas d'un écoulement laminaire), il est possible d'identifier à certaines grandeurs électriques une équivalence à la microfluidique [27]. Le tableau 1.2 récapitule l'ensemble de ces grandeurs associé à leurs équivalences.

TABLE 1.2 – Analogie entre les grandeurs microfluidiques et électriques.

Grandeurs microfluidiques	Grandeurs électriques
P - Pression	U - Tension
V - Volume	Q - Charge
Q ou Φ - Débit volumique	I - Courant
R_h - Résistance hydrodynamique	R - Résistance électrique
C_h - Capacité hydrodynamique	C - Capacité électrique

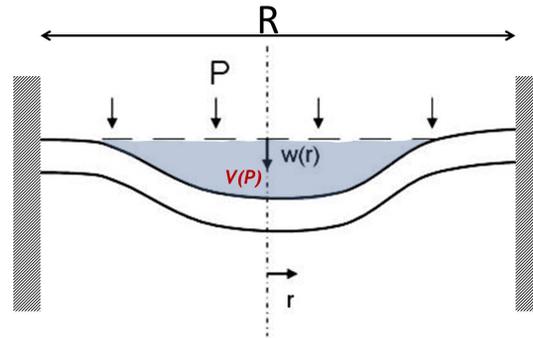


FIGURE 1.5 – Déformation de la membrane sous l'effet d'une pression de charge uniforme.

La notion de capacité hydrodynamique en microfluidique peut être assimilée à la déformation élastique d'un matériau. Nous allons étudier un exemple d'une telle déformation, qui correspond à la déformation d'une membrane soumise à une pression P (figure 1.5), la déflexion de cette membrane va générer un volume qui sera rempli par un volume égal de fluide. Le volume V de cet espace créé dépend de la capacité hydrodynamique C_h de la membrane ainsi que de la pression P selon la relation :

$$V = C_h \cdot P \quad (1.16)$$

analogue à la relation électrique : $Q = C \cdot U$ où Q est la charge électrique, C la capacité et U la tension.

Lors de la fabrication du dispositif, l'épaisseur de la membrane est contrôlée par la gravure face arrière du dispositif. De cette manière, la membrane peut être assimilée à celle d'une plaque mince encastrée subissant une charge uniforme (figure 1.5). Il est possible de déterminer la déflexion de

la membrane à l'aide de formules issues de la théorie de l'élasticité.

La déformation que subit la membrane lorsqu'une charge uniforme est appliquée dessus est donnée par la relation suivante [28] :

$$w(r) = \frac{P}{64D} \cdot (R^2 - r^2)^2 \quad (1.17)$$

où $w(r)$ est la déflexion, R est le rayon de la membrane, r la distance radiale, P la pression de charge appliquée uniformément sur la membrane et D le coefficient de rigidité donné par :

$$D = \frac{Eh^3}{12(1 - \nu^2)} \quad (1.18)$$

avec E le module de Young, ν le coefficient de Poisson et h l'épaisseur de la membrane. La déformation maximale au centre de la membrane s'obtient pour $r = 0$ et s'écrit alors :

$$w_{max} = \frac{PR^4}{64D} \quad (1.19)$$

Pour déterminer la relation de la capacité hydrodynamique C_{hm} (définition 1.16), il est nécessaire de connaître la relation entre le volume et la pression pour une membrane circulaire (figure 1.5). Cette relation induit qu'il faille intégrer la déformation $w(r)$ sur la surface de la membrane afin de déterminer le volume total déplacé sous l'effet de la pression P :

$$\begin{aligned} V(P) &= \int_0^R 2\pi \cdot r \cdot w(r) \cdot dr \\ &= \int_0^R 2\pi \cdot r \cdot \frac{P}{64D} \cdot (R^2 - r^2)^2 dr; \text{ (on pose } x = r^2) \\ &= \int_0^{R^2} dx \cdot (R^2 - x)^2 \frac{P\pi}{64D}; \text{ (on pose } y = R^2 - x) \\ &= \int_0^{R^2} \pi \cdot \frac{P}{64D} \cdot (y)^2 dy \\ &= \frac{1}{3} R^6 \cdot \frac{P\pi}{64D} \end{aligned} \quad (1.20)$$

A partir de la relation 1.20 et par identification avec la relation 1.16, le terme correspondant à la capacité hydrodynamique de la membrane, noté C_{hm} , peut être isolé :

$$C_{hm} = \frac{\pi R^6}{192D} \quad (1.21)$$

Cette capacité sera utilisée dans la section 3.2.5 afin de déterminer le temps de réponse théorique du système à l'aide des dimensions du dispositif (également fournis dans cette section).

1.1.3.2 Lois de Kirchhoff

De la même façon qu'en électricité, les lois de Kirchhoff peuvent s'appliquer au domaine de la microfluidique dans le cas d'un fluide incompressible. Ainsi, quelque soit le nombre d'intersections dans un réseau de canaux, la masse et le volume sont conservés.

La figure 1.6 représente un exemple de circuit microfluidique comportant plusieurs jonctions où A, B, C et D sont les nœuds du circuit, ΔP la perte de charge pour chaque canal, et Φ le débit dans chaque canal.

En appliquant la première loi de Kirchhoff (loi des nœuds), on peut alors écrire pour les nœuds A, B, C et D les équations respectives suivantes :

$$\begin{aligned}\Phi_5 &= \Phi_1 + \Phi_8 \\ \Phi_6 &= \Phi_2 + \Phi_5 \\ \Phi_7 &= \Phi_3 + \Phi_6 \\ \Phi_8 &= \Phi_4 + \Phi_7\end{aligned}$$

La seconde loi, dite *loi des mailles*, nous permet d'écrire pour la maille ABCD la relation suivante :

$$\Delta P_{AB} + \Delta P_{BC} + \Delta P_{CD} + \Delta P_{DA} = 0 \quad (1.22)$$

1.1.3.3 Echauffement thermique

Également bien connu dans les systèmes électriques, l'échauffement thermique par effet Joule traduit une augmentation de la chaleur par unité de temps (J/s) lorsqu'un courant I traverse une résistance R et se définit par la relation $P = R \cdot I^2$. Cette relation vaut également pour les systèmes fluidiques lorsque le débit du fluide Q traverse un canal ayant une résistance hydrodynamique R_h . La puissance P dégagée exprime alors une quantité de chaleur par unité de temps (J/s) donnée par la relation :

$$P = R_h \cdot Q^2 \quad (1.23)$$

Par ailleurs, pour déterminer la variation de température lors d'un échauffement du fluide en circulation, on applique la relation suivante :

$$P = C_m \cdot M \cdot \Delta T \quad (1.24)$$

avec P la puissance dégagée (J/s), C_m la capacité thermique massique ($J/kg \cdot K$), M le débit massique (kg/s) et ΔT la différence de température $T_1 - T_2$ (avec T_2 la température extérieure mesurée).

1.1.4 Mousses et émulsions - Notions de base

1.1.4.1 La mousse et son évolution au cours du temps

Formation de la mousse

La mousse naît lorsque du gaz est injecté avec suffisamment d'énergie dans une phase liquide (en secouant une bouteille avec de l'eau et du savon par exemple). Toutes les mousses ne sont pas identiques entre elles et leur évolution dans le temps dépend de la nature de la phase gazeuse, du liquide utilisé ainsi que de la présence et la nature des agents de surface (stabilisants). Ces derniers sont généralement ajoutés à la mousse pour lui permettre de garder sa forme initiale plus longtemps. Ces tensioactifs permettent en effet de renforcer l'interface des bulles et limitent la détérioration de la mousse au cours du temps.

Mûrissement

Une fois la bulle constituée, la pression à l'intérieur de celle-ci est très supérieure à la pression extérieure en vertu de la pression de Laplace, ce qui incite le gaz à diffuser dans le liquide entourant la bulle. Lorsque deux bulles sont en contact, le gaz va diffuser des petites bulles (ayant une pression de Laplace supérieure, *c.f.* section 1.1.2.1) aux grandes bulles (figure 1.7) modifiant ainsi la structure de la mousse en diminuant le nombre de bulles total et en augmentant le diamètre et la distribution de taille des bulles restantes.

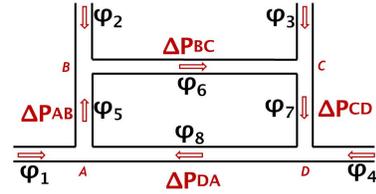


FIGURE 1.6 – Exemple de réseau de canaux microfluidiques.

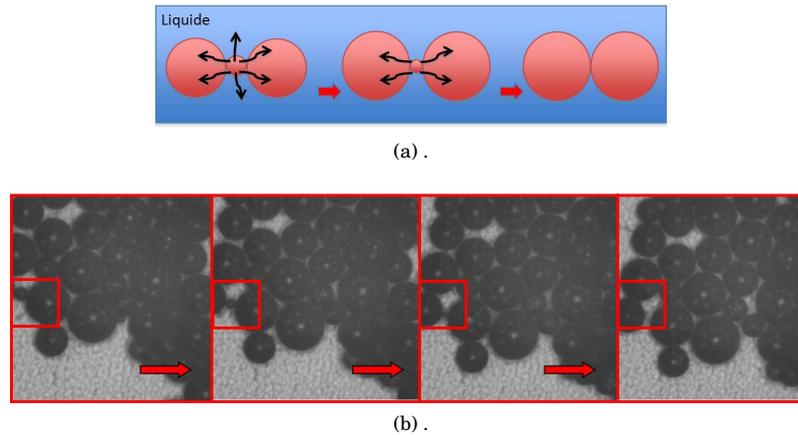


FIGURE 1.7 – **a.** : Schéma de principe du mûrissement (diffusion de gaz des petites bulles vers les plus grosses). **b.** : Evolution d'une mousse au cours du temps (images obtenues avec un microscope optique Leica DMI 5000M au cours des expériences réalisées avec le microgénérateur de dispersions).

Dissolution

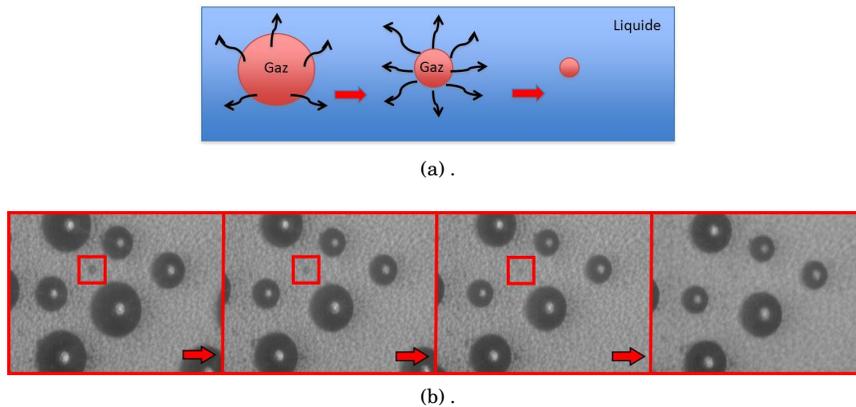


FIGURE 1.8 – **a.** : Schéma de principe de la dissolution (diffusion de gaz dans le liquide). **b.** : Diffusion du gaz présent dans une bulle jusqu'à la disparition de cette bulle (images obtenues avec un microscope optique Leica DMI 5000M au cours des expériences réalisées avec le microgénérateur de dispersions).

Un autre phénomène de vieillissement d'une mousse est la dissolution. Toujours sous l'effet de la différence de pression interne et externe d'une bulle, le gaz va s'échapper progressivement de la bulle jusqu'à ce que celle-ci disparaisse totalement.

Ce phénomène intervient même lorsqu'il n'y a pas nécessairement de contact entre les bulles et peut être accentué, lorsque l'on souhaite faire disparaître toutes les bulles dans un système par exemple, en injectant du fluide à l'entrée et/ou à la sortie du dispositif. Cette manipulation est davantage efficace lorsque le liquide injecté a été au préalable dégazé. Ainsi la quantité de fluide va se voir augmenter et le gaz pourra se diffuser plus rapidement. On peut également accélérer ce phénomène en augmentant la pression statique du système, ce qui ajoute une compression supplémentaire des bulles et à une diffusion amplifiée.

Coalescence

La coalescence définit la rupture du film entre deux bulles, qui fusionnent en une seule. En effet, l'épaisseur de ce film s'amincit à raison que le volume de la bulle augmente (à cause du phénomène de mûrissement). On peut observer ce phénomène facilement lorsqu'on laisse une mousse sécher par exemple : on constate que les bulles grossissent de plus en plus jusqu'à éclater. Ce phénomène apparaît également lorsqu'une mousse est créée à partir d'un dispositif microfluidique et que les bulles sont confinées et se rapprochent entre elles suite à un séchage de la mousse ou à cause d'une mauvaise évacuation de la mousse (effet "bouchon") au niveau d'une constriction d'un canal (figure 1.9, image obtenue avec un microscope optique Leica DMI 5000M au cours des expériences réalisées avec le microgénérateur de dispersions).

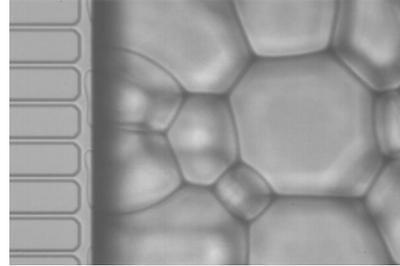


FIGURE 1.9 – Coalescence de bulles.

1.1.4.2 Gouttes et émulsions

Les émulsions sont le résultat d'un mélange entre deux liquides non miscibles. On les retrouve au quotidien dans différents produits alimentaires (lait, mayonnaise), cosmétiques (shampooing). Elles sont généralement définies en fonction du diamètre des gouttes qui les constituent, on parlera alors de macro, micro ou encore de nanoémulsions.

La génération contrôlée d'émulsion dans les microsystèmes est encore en plein développement ce qui explique pourquoi à l'heure actuelle, il n'y ait que très peu de systèmes commercialisés [21]. Depuis une dizaine d'années maintenant [17], la recherche dans le milieu académique et/pour le milieu industriel progresse avec plusieurs techniques de générations d'émulsions à l'aide de microgénérateurs. Nous présenterons dans le chapitre 1.2 ces différentes méthodes et par la suite dans le chapitre 2, consacré à l'étude du générateur développé au cours de cette thèse, les différents phénomènes observés dans l'évolution d'une émulsion au cours du temps.

1.1.4.3 Définition et impact d'un surfactant

Un surfactant (agent de surface ou encore tensioactif) est une molécule constituée de deux parties, l'une hydrophile (la tête) et l'autre hydrophobe (la queue). On appelle cette molécule amphiphile car elle se retrouve à la fois hors et dans la phase aqueuse. Lorsque l'on ajoute par exemple un surfactant dans de l'eau en contact avec de l'air, la tête va être plongée dans l'eau et la queue va ressortir, formant ainsi une couche située au niveau de l'interface air/eau. Les forces d'attraction entre les têtes et l'eau sont moindres que les forces entre les molécules d'eau entre elles. Cela permet alors de réduire la tension de surface au niveau de l'interface air/eau.

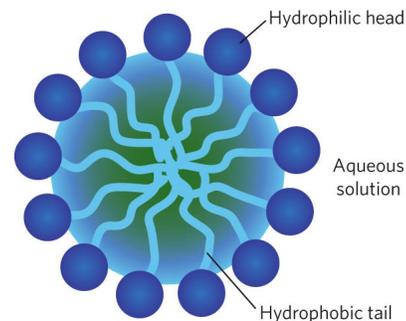


FIGURE 1.10 – Schéma d'une micelle constituée de molécules de surfactant dans une phase aqueuse [29].

Lorsque la quantité de surfactant atteint un niveau trop élevé dans la phase liquide, il se forme des agrégats de molécules formant un micelle comme indiqué figure 1.10. La formation de ces micelles apparaît lorsque la concentration de surfactant atteint un

seuil de saturation communément appelé CMC (Concentration Micellaire Critique).

Dans le cas d'une interface eau/huile, il apparaît que la tension de surface diminue à raison que la concentration en surfactant croît, jusqu'à ce que cette interface soit saturée. Arrivée à ce seuil critique (CMC), la tension de surface continue de diminuer mais de manière plus lente car le système sature, et seul le nombre de micelles continue d'augmenter jusqu'à ce que la tension de surface ait atteint son niveau le plus bas [21].

Ainsi, lors de la formation de mousse ou d'émulsion la présence de surfactant est nécessaire pour diminuer la tension de surface et donc stabiliser la mousse/émulsion, afin de limiter les phénomènes de coalescence. Au cours de nos expériences menées sur la génération de dispersions, nous avons employé du surfactant à plusieurs multiples de la CMC afin de rendre les mousses/émulsions stables et monodisperses.

1.1.5 Mélange de fluides

1.1.5.1 Lois de diffusion

Les dimensions caractéristiques des dispositifs présentés dans ce manuscrit avec les gammes de débits imposées aux fluides permettent de se situer dans un régime laminaire avec un nombre de Re largement inférieur à 1. Ainsi ce sont les effets visqueux qui vont dominer les effets inertiels et les lignes de courants du fluide seront parallèles entre elles. Le mélange entre deux fluides s'effectuant par diffusion, nous verrons par la suite (chapitre 1.4) qu'il existe plusieurs microsystèmes (micromélangeurs) qui proposent des techniques de séparation et de re-combinaison de flux pour accélérer ce phénomène. Dans cette section nous aborderons les lois qui définissent ce phénomène.

La diffusion est définie comme étant le déplacement de molécules d'une forte concentration vers une région de plus faible concentration suite au mouvement brownien [30]. La première loi de Fick permet de décrire mathématiquement la diffusion par :

$$\mathbf{J} = -D \nabla c \quad (1.25)$$

où J est le flux de diffusion, c la concentration moléculaire et D le coefficient de diffusion. En combinant l'équation de conservation :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{J} \quad (1.26)$$

à l'équation 1.25, on obtient alors la seconde loi de Fick qui s'exprime par :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot D \nabla c = D \nabla^2 c \quad (1.27)$$

En se rapportant à des grandeurs caractéristiques, il est alors possible d'obtenir des approximations du temps et de la longueur de diffusion. Par exemple en divisant la longueur caractéristique du système au carré par le coefficient de diffusion D on obtient un temps approximatif nécessaire pour que la diffusion s'effectue sur l'ensemble du système. Par corollaire il est possible de déterminer la longueur de diffusion :

$$d = \sqrt{Dt} \quad (1.28)$$

où d est la distance caractéristique approximative de diffusion, t le temps disponible pour achever la diffusion et D le coefficient de diffusion.

1.1.5.2 Application

A titre d'exemple, on prendra le cas d'un micromélangeur passif utilisant la division du fluide (laminage séquentiel) comme technique pour réduire le temps de mélange. La division de fluides s'obtient à l'aide de cellules dites de laminage pour séparer et recombinaison les fluides à mélanger.

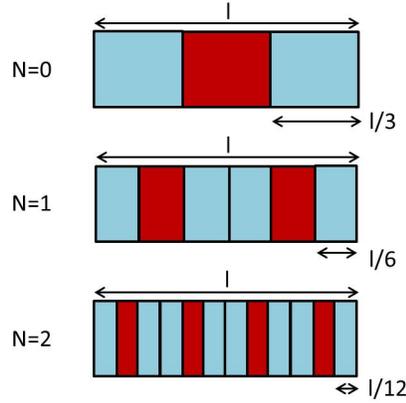


FIGURE 1.11 – Schéma de la division des fluides.

Lorsque de l'eau est injectée de part et d'autre du canal avec d'autres liquides miscibles (ou de l'eau riche en additifs comme des agents fluorescents), on obtient dans le cas d'une division homogène, un dédoublement des deux phases comme indiqué sur figure 1.11.

La première étape consiste à envoyer les deux fluides (\$N=0\$), après un premier passage dans une cellule de laminage (\$N=1\$) la largeur de chaque phase se retrouve être égale à \$l/6\$ puis à \$l/12\$ après un second passage dans une autre cellule (\$N=2\$). La largeur de diffusion \$d_{mix}(N)\$ de chaque phase évolue donc selon la relation :

$$d_{mix}(N) = \frac{l}{3 \cdot 2^N} \quad (1.29)$$

En appliquant les termes de l'équation 1.29 dans la relation 1.28, on peut définir le temps nécessaire pour que le mélange s'effectue :

$$\begin{aligned} t_{mix}(N) &= \frac{d_{mix}^2(N)}{D} \\ &= \frac{l^2}{9 \cdot 2^{2N} \cdot D} \end{aligned} \quad (1.30)$$

On peut ainsi déterminer le gain temporel de l'effet des cellules de laminage sur le temps de mélange (figure 1.12) en effectuant le ratio entre \$t_{mix}(0)\$ correspond au temps initialement requis pour effectuer le mélange et le temps \$t_{mix}(N)\$ avec \$N\$ séquences de laminage :

$$G_{temp} = \frac{t_{mix}(0)}{t_{mix}(N)} = 2^{2N-2} \quad (1.31)$$

Un micromélangeur utilisant cette méthode de division de fluides, sera présenté par la suite (chapitre 4). Ce dispositif présente un total de 9 cellules de laminage et permet de réaliser des mélanges de fluides à viscosité variable en adéquation avec les valeurs théoriques escomptées.

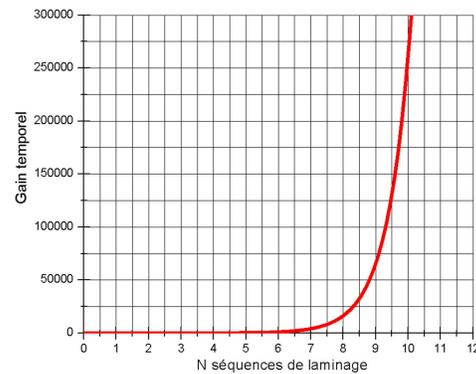


FIGURE 1.12 – Gain temporel du mélange en fonction du nombre de cellules de laminage.

1.1.6 Conclusion

Dans cette partie introductive, nous avons défini la microfluidique et en avons parcouru les principaux domaines d'activités.

L'objectif de cette thèse est de parvenir à réaliser un dispositif permettant la création ainsi que l'étude de la rhéologie *in-situ* de fluides complexes. Pour parvenir à cette finalité, nous avons concentré nos efforts sur trois grandes thématiques liées à l'usage de fluides complexes en géométrie confinée : la génération de microdispersions, la mesure rhéologique à l'aide d'un capteur MEMS et enfin le mélange de liquides.

Nous avons également présenté de façon succincte les différentes lois liées aux phénomènes observés au cours de nos travaux afin de permettre au lecteur de connaître les outils mathématiques qui nous ont permis de développer d'appréhender ces phénomènes.

Après avoir présenté les outils mathématiques liés aux trois axes qui constituent cette thèse, nous allons à présent étudier l'état de l'art correspondant.

1.2 Microgénérateurs de mousse et d'émulsion

1.2.1 Introduction

Au cours de la dernière décennie, l'étude de la génération de dispersions à base de microdispositifs est devenue un champ de recherche important. L'objectif de ces dispositifs microfluidiques est d'obtenir la combinaison parfaite entre taille, stabilité, monodispersité (bulles/gouttes d'un même diamètre) et haut débit de production. Les enjeux sont présents aussi bien dans le milieu académique que dans le milieu industriel (secteurs de la médecine, de l'agro alimentaire, de l'environnement, de la biologie).

Les avancées technologiques en terme de fabrication ont su montrer des avantages qui ont été profitables à la réalisation de microgénérateurs de dispersions. De nombreuses techniques de générations de dispersions ont alors pu être développées notamment à partir de dispositifs microfluidiques et/ou MEMS.

Nous verrons dans ce chapitre une présentation non-exhaustive des différents types de générateurs capables de produire des mousses et des émulsions à l'échelle micrométrique, ainsi que les méthodes employées pour obtenir un débit de production élevé tout en conservant des dispersions stables à travers le temps.

1.2.2 T-junction

L'une des techniques les plus usitées implique l'utilisation de jonctions en T (*T-junction*, figure 1.13), grâce à laquelle la taille des gouttes générées est commandée par la géométrie, ainsi que par les débits de phases continue et dispersée. Les fréquences de production obtenues par cette méthode sont de l'ordre de quelques *kHz* [31]. Les détails géométriques du dispositif sont d'une grande importance et ont un impact direct sur le nombre capillaire [32] qui contrôle le phénomène de cassure de la goutte.

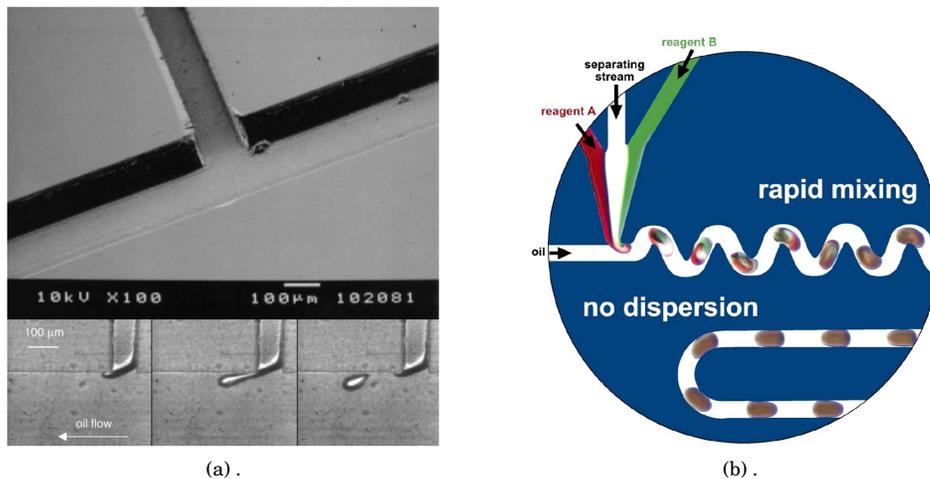


FIGURE 1.13 – Principe et application de la jonction en T. **a.** : Microphotographie d'une jonction en T avec la formation d'une goutte. [31]. **b.** : Utilisation de la jonction en T pour réaliser des mélanges rapides. [33].

La géométrie peut également être utilisée pour rompre les gouttes préexistantes [34], soit avec la *T-Junction* soit en utilisant des obstacles isolés pour séparer une goutte en deux gouttes "filles" (figure 1.14).

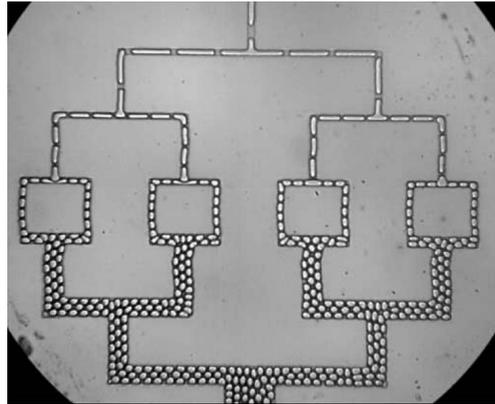


FIGURE 1.14 – Utilisation de la jonction en T en cascade pour diviser les gouttes mères en gouttes filles de diamètre moindre. [34]

1.2.3 Flow-focusing

Le *flow-focusing* (figure 1.15) est une autre méthode bien connue pour générer des dispersions dans des systèmes microfluidiques. Dans ce cas, la phase continue entoure de tous côtés un filament de la phase dispersée, qui subit une instabilité capillaire résultant dans la génération d'une goutte. Les débits des deux phases contrôlent la taille et la fréquence de production d'une goutte [35], permettant une production avec un coefficient de variation (CV) de l'ordre 1-2% avec une fréquence de production pouvant aller jusqu'à 100kHz [36].

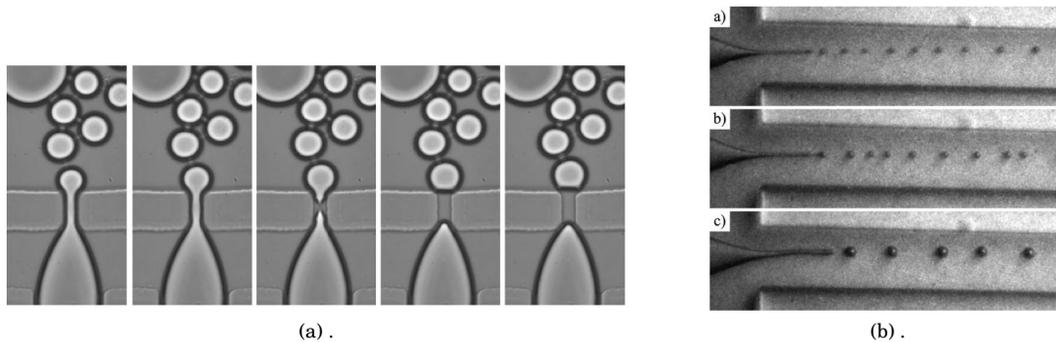


FIGURE 1.15 – Principe et application du flow-Focusing. **a.** : Microphotographies des étapes de fabrication de gouttes avec le flow-Focusing. [35]. **b.** : Flow-Focusing avec filament très long et stable pour générer de très petites bulles. [37].

Récemment, les travaux ont montré un nouveau régime avec un filament long et stable [37] (figure 1.15b) qui permet d'obtenir de toutes petites bulles avec un diamètre de $5\mu\text{m}$ et une fréquence de production approchant les 100kHz .

Dans les systèmes basés sur une seule jonction (soit *T-junction* ou *flow-focusing*), les cadences de production et le volume des gouttes ne peuvent être contrôlés indépendamment car ils sont liés entre eux. Pour obtenir un meilleur débit de la production, la parallélisation des sites de production a été intégrée sur certains dispositifs [38] - [39]. Toutefois, la rétroaction hydrodynamique (*feedback*) entre les sites de production voisins pose souvent des problèmes de stabilité dans de tels systèmes, ce qui entraîne une production chaotique et une polydispersité significative [40]-[41]. Même dans

les systèmes impliquant un seul site de production, la compressibilité du gaz peut conduire à des interactions hydrodynamiques comme la rétroaction dans une production de mousse [42], qui peut également conduire à d'importantes variations dans le diamètre.

1.2.4 Réseaux de microcanaux

D'une manière similaire, Sugiura et al. et les travaux liés [17]-[43]-[44]-[45], proposent une méthode de production d'émulsion appelée émulsification par microcanaux (*microchannel emulsification* ou MCE), basée sur une géométrie qui impose le transit d'une "crêpe" de fluide 2D confinée, en une goutte sphérique tridimensionnelle (figure 1.16). Le principal avantage de cette géométrie provient du contrôle indépendant influençant la taille des gouttes (géré principalement par les paramètres géométriques du dispositif) et la fréquence de production (imposée par le débit de la phase dispersée).

Dans le cadre de notre étude sur la création d'une puce permettant la caractérisation et la génération de fluides complexes (comprenant des mousses et des émulsions), l'avantage que présente cette géométrie lié au contrôle séparé de la taille ainsi que de la fréquence de production est donc essentielle. En effet, en ayant la possibilité de faire varier le volume et la quantité de bulles/ gouttes créées, il sera plus évident de comprendre et de modéliser la réponse du système en fonction de ces deux paramètres. Pour cette raison, nous avons donc opté pour cette méthode de génération de mousse et d'émulsion.

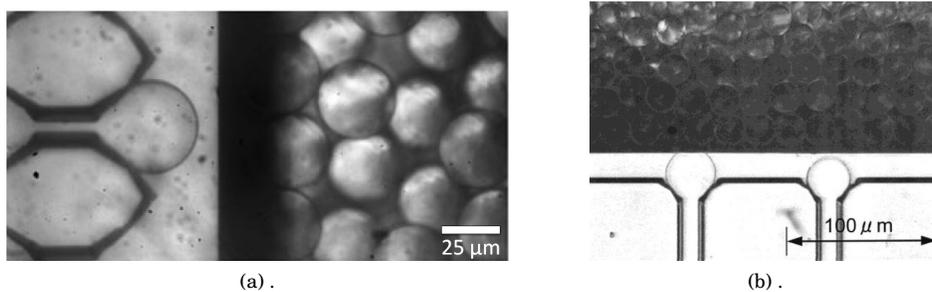


FIGURE 1.16 – Principe et application de la génération d'émulsion à partir d'un réseau de microcanaux. **a.** : Dispositif proposé par [46]. **b.** : Microchannel Emulsification Array) proposé par [17].

D'autres travaux [39]-[46] sur des géométries à réseaux de microcanaux (figure 1.17) ont été réalisés et montrent des résultats similaires à ceux des travaux de Sugiura et al. Plusieurs tentatives ont été faites pour comprendre le comportement du générateur à l'aide d'une combinaison d'approches numériques [47]-[48], théoriques [44] ou phénoménologiques [18], mettant en avant l'importance des effets géométriques et de la dynamique de l'angle de contact.

1.2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une liste des méthodes les plus couramment usitées dans la génération de dispersions. Les méthodes *T-junction* et *flow-focusing* présentent certes des performances intéressantes, les résultats en terme de monodispersité atteignant en moyenne un CV de 5%, avec des fréquences de production pouvant aller jusqu'à la centaine de *kHz*. Néanmoins, ces deux techniques présentent l'inconvénient de ne pas pouvoir séparer débit de production et contrôle du volume des dispersions.

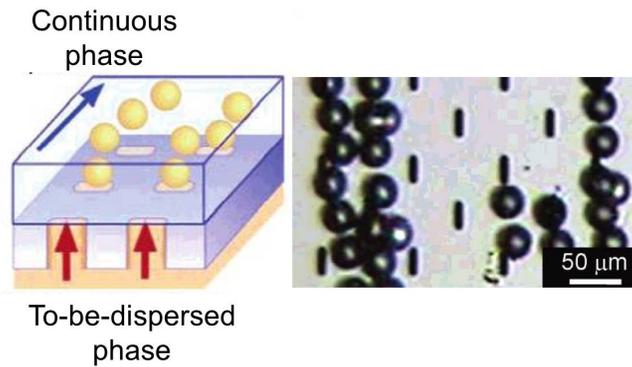


FIGURE 1.17 – Génération de dispersions à partir d'un réseau de microcanaux avec une membrane asymétrique [39].

La technique de réseau de microcanaux proposé par Sugiura et al. tend à répondre d'avantage à cette problématique en permettant d'une part de créer plus de dispersions grâce aux multiples sites de production, et d'autre part de permettre de gérer de façon indépendante taille et débit des bulles/gouttes générées. Ce dernier avantage est dû au fait que ce sont les paramètres géométriques qui imposent la taille des dispersions, tandis que la fréquence de production est gérée en variant le débit de la phase continue.

Nous verrons dans le chapitre 2 que dans le cas des mousses la problématique est encore plus complexe, car le volume des bulles dépend de manière subtile de la pression du gaz, ce qui a une influence directe sur le taux de production et la taille des bulles.

1.3 Rhéomètres adaptés à la microfluidique

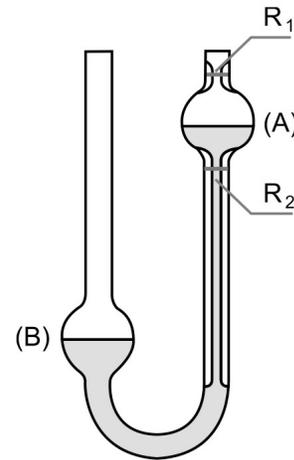
1.3.1 Introduction

Les rhéomètres et viscosimètres dits classiques sont très utilisés dans l'industrie et le milieu de la recherche académique. Ils permettent de réaliser des mesures fiables et efficaces de viscosité ainsi que d'autres propriétés viscoélastiques des fluides. Ils possèdent cependant plusieurs inconvénients avec en premier lieu, un volume de fluide nécessaire à chaque mesure assez important (de l'ordre de plusieurs dizaines de mL), une gamme de taux de cisaillement limitée par la géométrie du système ou encore l'imperfection de certains composants mécaniques.

Nous verrons dans ce chapitre en plus des systèmes classiques, une liste non-exhaustive des différents rhéomètres appliqués à la microfluidique. Ces microdispositifs présentent pour la majeure partie d'entre eux, certains avantages en comparaison avec les rhéomètres classiques. En effet, de par leur taille considérablement réduite, la quantité de fluide lors de chaque série de mesures n'est plus que de l'ordre de quelques mL , le temps de mesure est réduit, la géométrie confinée permet de travailler à des taux de cisaillement bien supérieurs. Ils possèdent également l'avantage pour la plupart, d'offrir la possibilité de visualiser en temps réel l'écoulement du fluide au sein de la géométrie grâce à la transparence du verre (dans le cas de MEMS où l'on aurait soudé une plaque de verre sur le silicium pour étanchéifier le système), ou du PDMS dans le cas de systèmes réalisés par *soft lithography*.

1.3.2 Viscosimètres capillaires

Un exemple de viscosimètre capillaire est celui d'Ostwald. Il est constitué d'un tube en verre en forme de U avec à chaque extrémité des branches une chambre (notées A et B sur la figure 1.18). Le principe consiste à remplir la branche B du fluide à tester puis à aspirer ce fluide jusqu'à ce qu'il atteigne le sommet de la branche A . Une fois l'aspiration coupée, le liquide va redescendre vers la branche B . En mesurant le temps que le fluide met à s'écouler entre les deux repères notés R_1 et R_2 et sachant le volume de la chambre de la branche A , il est possible de déterminer la viscosité cinématique du fluide. A aujourd'hui, ce type de viscosimètre est commercialisé par plusieurs fabricants dont *Cannon*, qui propose plusieurs modèles de viscosimètres adaptés en fonction de la nature du fluide et du besoin (viscosimètre à débit inversé, à petits volumes ou encore sous vide).



Un autre exemple de viscosimètre est le viscosimètre à chute de bille. Dans un tube (aux dimensions connues) rempli du fluide à tester est envoyée une bille de taille et de masse connues. Lorsque la bille a atteint une vitesse constante, on mesure le temps de déplacement entre deux repères placés sur le tube. A partir de l'équation de Stokes il est possible d'obtenir la force de freinage, laquelle est compensée par la force d'Archimède et celle de la gravité. En égalant ces forces on peut déterminer la viscosité du fluide.

FIGURE 1.18 – Viscosimètre capillaire dit d'Ostwald. [49]

1.3.3 Rhéomètres rotatifs

Dans cette section, nous nous intéresserons aux rhéomètres conventionnels. Ces derniers pouvant être classés en deux catégories de mesures spécifiques, la viscosité et la limite d'élasticité d'un

fluide.

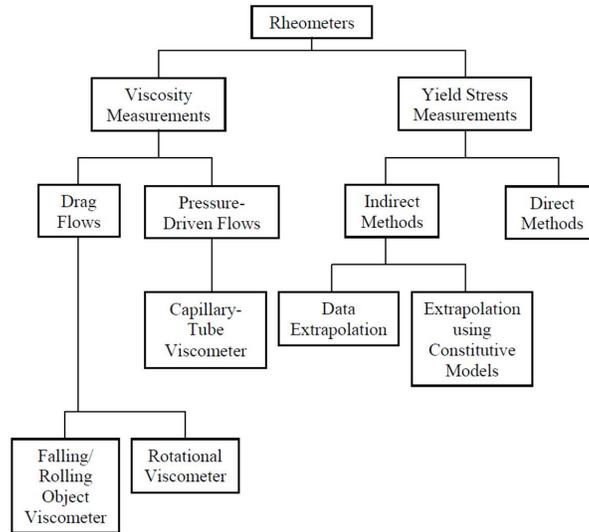


FIGURE 1.19 – Classification des rhéomètres conventionnels [50]

Les rhéomètres classiques, dits rotatifs ou à partie mobile, sont constitués d’une partie fixe (le stator) et d’une partie mobile (le rotor) positionnée autour d’un axe de rotation central. Le fluide placé entre ces deux parties (l’entrefer) se retrouve soumis à un cisaillement lorsque la partie mobile est en mouvement, autrement dit, lorsqu’on y exerce une vitesse de rotation Ω avec un couple Γ . A partir de ces deux grandeurs physiques, il est possible d’extraire les données rhéologiques propres au fluide telles que la contrainte et le taux de cisaillement. Il existe trois types de rhéomètres communément employés : la géométrie à cellule de Couette, la géométrie plan-plan et cône-plan.

1.3.3.1 Cellule de Couette

Le rhéomètre dit à cellule de Couette (figure 1.20) est constitué de deux cylindres (intérieur et extérieur) d’une hauteur h . Le fluide est positionné entre les deux cylindres dont l’un restera fixe et l’autre sera en rotation.

Outre la large gamme de mesure de viscosité (entre $1\text{mPa}\cdot\text{s}$ et $10^7\text{Pa}\cdot\text{s}$), ce rhéomètre nécessite cependant un volume de fluide important pour réaliser une mesure (plusieurs mL).

De plus, en comparaison avec un rhéomètre cône-plan, la précision des mesures est moindre dû à la taille de l’entrefer qui va définir la précision des mesures. Si cet écart se rapprochait de celui d’un rhéomètre plan-plan par exemple, les résultats seraient plus précis.

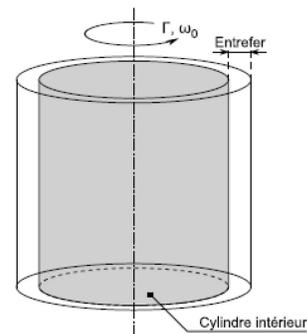


FIGURE 1.20 – Rhéomètre rotatif à cellule de Couette. [51]

1.3.3.2 Rhéomètres Plan-plan et Cône-plan

Le rhéomètre plan-plan (illustré figure 1.21a) consiste à positionner entre deux plaques parallèles de rayon R le fluide. La hauteur H qui sépare ces deux plaques (gap) est de l’ordre d’une

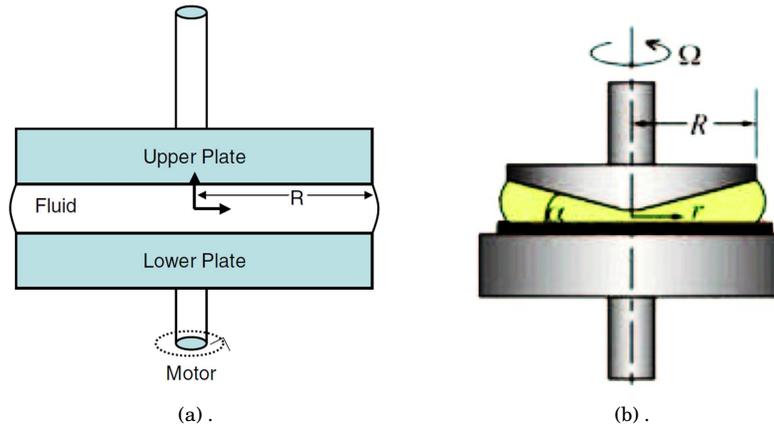


FIGURE 1.21 – Schémas simplifiés des deux rhéomètres. **a.** : Rhéomètre plan-plan. [52]. **b.** : Rhéomètre cône-plan. [53].

fraction de mm pouvant aller jusqu'à une centaine de microns. Le principe est de faire tourner la plaque supérieure (rotor) à une vitesse angulaire Ω , tandis que la plaque inférieure reste immobile (stator). Afin de s'assurer d'obtenir des mesures correctes, il est nécessaire de s'assurer qu'il n'y ait pas de bulles lorsque le fluide est déposé entre les deux plaques [54]. Il est également crucial de vérifier que les surfaces des deux plaques soient parallèles et sans fissure afin de ne pas altérer la mesure à des forts taux de cisaillement [55]. Pour une hauteur H correspondant à l'écart entre les deux plaques parallèles, le taux et la contrainte (dans le cas idéal où les deux plaques sont parfaitement parallèles) de cisaillement sont donnés par :

$$\dot{\gamma} = \frac{R\Omega}{H} \quad \text{et} \quad \sigma = \frac{2\Gamma}{\pi R^3}$$

Le rhéomètre cône-plan (figure 1.21b) est semblable au plan-plan à la seule différence que le rotor est remplacé par une partie conique d'angle α et de rayon R . Le taux et la contrainte de cisaillement sont considérés constants et indépendants du rayon ce qui permet une mesure directe des propriétés rhéologiques dans le cas où l'angle α est suffisamment petit. Dans ces conditions, ces deux paramètres se définissent respectivement alors par :

$$\dot{\gamma} = \frac{r\Omega}{r \tan \alpha} = \frac{\Omega}{\tan \alpha} \quad \text{et} \quad \sigma = \frac{3\Gamma}{2\pi R^3}$$

1.3.3.3 Limitations

Plusieurs suppositions sont à considérer dans le cas de mesures faites avec des appareils classiques : l'écoulement du fluide se fait à une température constante, les effets inertiels sont négligés. Par ailleurs les mesures rhéologiques sont moyennées sur l'ensemble de l'entrefer de chacune des trois cellules, ce qui ne permet pas de mesurer toutes les propriétés du fluide dans le cas de fluides complexes.

La géométrie de ces rhéomètres comporte des limitations dans l'étude des fluides. L'une des principales est due aux effets inertiels dans la cellule de Couette où passée une certaine vitesse de rotation, la nature de l'écoulement se retrouve affectée. Le nombre de Reynolds permet d'observer la prédominance des termes visqueux par rapport aux termes inertiels ($Re = (\rho v L)/\mu$), et devient dans ce cas très supérieur à 1.

De même que dans les cellules plan-plan et cône-plan, lorsque le fluide est soumis à des contraintes trop importantes, il se retrouve expulsé hors du rhéomètre ce qui rend les mesures à forts taux de cisaillement impossible, limitant ainsi la gamme de mesure.

1.3.4 Adaptation de rhéomètres avec partie mobile à la microfluidique

Nous avons vu précédemment que les rhéomètres classiques présentent plusieurs désavantages dans l'étude de la rhéologie des fluides (quantité de liquide importante, gamme de taux de cisaillement limitée, etc...). Nous allons à présent consacrer cette section dans l'étude des différents rhéomètres adaptés à la microfluidique. Nous présentons ici une liste non-exhaustive des différents travaux dédiés à la réalisation de microsystèmes permettant de se soustraire des contraintes et des limitations des appareils de mesures classiques.

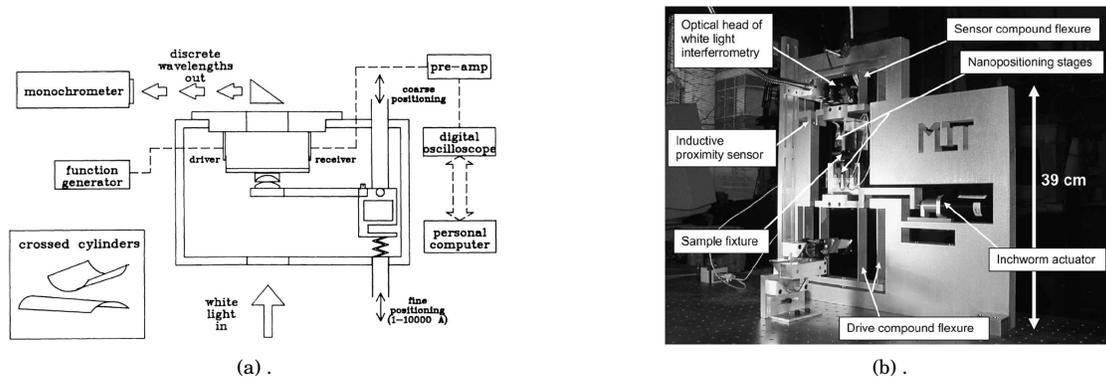


FIGURE 1.22 – **a.** : Schéma du système de cisaillement présenté par [56]. **b.** : Rhéomètre FMR (Flexure-based Microgap Rheometer) [57].

Les travaux de Granick et al. [56],[58] présentent un système (figure 1.22a) dans lequel le fluide est placé entre deux couches minces de mica. Un système de contrôle mécanique et de déplacement des plaques de mica par des éléments piezorésistifs, et de variation de l'espace entre les deux plaques permet d'imposer une contrainte sur le fluide dont la réponse en viscosité est relevée à l'aide d'un oscilloscope. La modélisation et la connaissance de tous les paramètres environnants de ce système analogue à un rhéomètre plan-plan, permet de mesurer les propriétés liées à l'écoulement du fluide telle que la viscosité dynamique.

Plus récemment, les travaux de Classen et McKinley [57] ont permis de réaliser un système similaire qui consiste en un rhéomètre à plaques coulissantes entre lesquelles le fluide est placé (figure 1.22b). Portant le nom de FMR (Flexure-based Microgap Rheometer), il possède en effet la particularité de compenser, à l'aide d'un ressort et d'un capteur, les imperfections de déplacements des plaques pour conserver un alignement le plus précis possible (résolution du capteur de $\pm 3nm$). Le parallélisme des surfaces de cisaillement ainsi que l'écart entre les plaques sont mesurés et contrôlés par interférométrie. Ce système permet l'étude de fluide à forte viscosité (en l'occurrence de la crème pour le visage) dont les mesures atteignent $10^5 Pa \cdot s$ à des contraintes de cisaillement supérieures à $10^4 Pa$.

On retrouve également parmi les modèles réduits de rhéomètres, un rhéomètre cône-plan utilisant un capteur de pression basé sur une membrane MEMS [59]. Le principe de ce dispositif est d'intégrer des capteurs de pression capacitifs sur la partie plane du cône-plan (figure 1.23a) puis d'adapter cette plaque sur un rhéomètre de type ARES (Rheometric Scientific Inc.) (figure 1.23b).

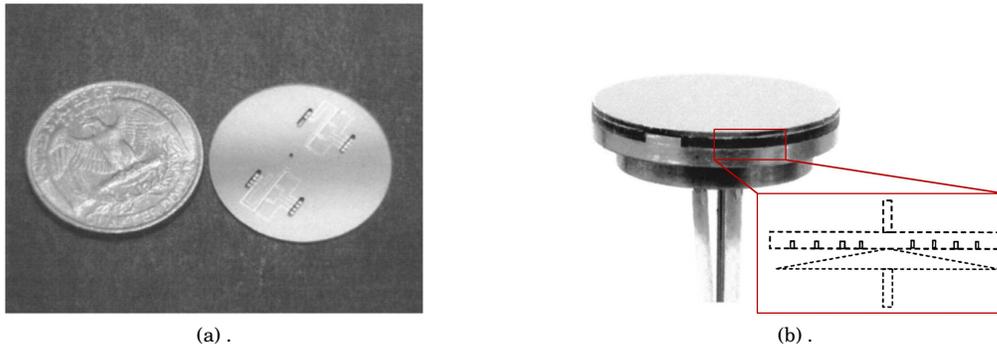


FIGURE 1.23 – **a.** : Photographie de la plaque contenant le capteur de pression. **b.** : Schéma du positionnement des capteurs de pression sur le rhéomètre. [59]

Le point fort de ce capteur est d'ajouter la possibilité d'effectuer une mesure supplémentaire de contrainte permettant au système complet (rhéomètre ARES et capteurs) de mesurer simultanément la contrainte de cisaillement et la contrainte normale (notés N_1 et N_2). De plus, aucun effet d'hystérèse n'a été observé lors des mesures de calibration dans les deux sens de rotation. Cependant, et ce malgré des résultats en adéquation avec les données du fabricant, les mesures réalisées avec du liquide SRM-1490 (*NIST*) n'excèdent pas un taux de cisaillement supérieur à $300s^{-1}$ avec ce système.

1.3.5 Rhéomètres et viscosimètres capillaires microfluidiques

1.3.5.1 Viscosimètre capillaire

L'équipe de Srivastava et al. ont réalisé un viscosimètre permettant l'étude de fluides newtoniens [60] et non-newtoniens [61]. Basé sur une technologie simple et facile à réaliser, ce viscosimètre a pour principe de faire circuler une goutte de fluide à travers un canal par effet de capillarité. Placée en entrée du capillaire, une goutte du fluide à tester va se voir aspirée à l'intérieur du capillaire sous l'effet de la différence de pression entre la pression atmosphérique et la pression de Laplace.

La mesure de la pression à l'intérieur du capillaire est liée à la tension de surface et à l'angle de contact dont les valeurs diffèrent d'un fluide à l'autre. Les chambres closes permettent de se soustraire de ces paramètres inconnus. Lorsque le fluide est injecté dans une chambre close, le gaz à l'intérieur va se comprimer jusqu'à ce que le système soit équilibré c'est à dire que la pression à l'intérieur de la chambre (supérieure à la pression atmosphérique) correspond à la pression dans le capillaire. Connaissant le volume d'air initial et le volume d'air après compression et en appliquant la loi des gaz parfaits, on obtient ainsi la pression à l'intérieur du capillaire. Cette méthode est indépendante de la nature du fluide et du substrat ce qui n'implique aucune connaissance de la tension de surface ou de l'angle de contact. Le premier couple de microcanal-chambre close est utilisé comme référence avec de l'eau et le second couple contient le fluide à étudier. Les dimensions et le temps d'écoulement étant connus, il est alors possible de déterminer la viscosité du fluide.

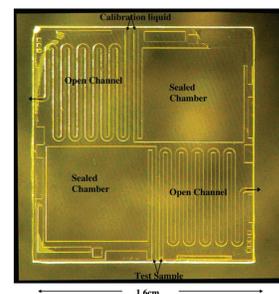


FIGURE 1.24 – Viscosimètre constitué de deux microcanaux "ouverts" et de deux chambres closes [60].

Ce dispositif à la fois peu onéreux et simple de réalisation, ne nécessite que $1\mu L$ voire moins de fluide pour réaliser une mesure prenant moins d'une minute. Il présente aussi l'avantage de ne

nécessiter d'aucune source externe d'injection de fluide, celle-ci se faisant par le dépôt manuel d'une goutte en entrée de chaque canal. Cependant, ce dispositif se voit limité dans le choix des fluides à tester, ces derniers devant être peu visqueux et avoir une bonne mouillabilité.

1.3.5.2 Rhéomètre et capteurs de pression

Dans ce dispositif, le fluide est envoyé à travers un capillaire à un débit connu appliquant une pression sur une membrane (transducteur MEMS). La déflexion de celle-ci permet d'obtenir une mesure de pression différentielle (figure 1.25) le long du canal.

Les courbes d'écoulement obtenues pour des fluides newtoniens [19] et non-newtoniens [62] ont montré une grande précision même à forts taux de cisaillement ($5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$), gamme très largement supérieure à celle des rhéomètres classiques. Ce dispositif permet grâce à sa taille réduite de réaliser des mesures en utilisant un faible volume de fluide de l'ordre de quelques mL par expérience.

Ce capteur est également pourvu d'un débitmètre qui mesure le "temps de vol" du fluide d'une cellule chauffante à une autre [63].

1.3.5.3 Viscosimétrie à forts taux de cisaillement

Une étude proposée par Pipe and McKinley [52] compare deux méthodes de mesures des propriétés viscosimétriques de fluides newtoniens (standards de viscosité et huiles minérales) et non-newtoniens (solution de PolyEthylOxide-Glycérol-Eau et solution à base de gomme xanthane) à des taux de cisaillement proches de 10^5 s^{-1} . Les deux techniques employées font appel à un rhéomètre ARES (Advanced Rheometric Expansion System) conventionnel et au microrhéomètre à capillaire VROC (Viscometer Rheometer On a Chip) fabriqué par *RheoSense* et qui est basé sur une mesure de pression différentielle à l'aide de capteurs similaires à ceux développés par Baek et Magda [59] (figure 1.26).

Dans le cas de la première géométrie, les mesures de viscosités pour les fluides newtoniens ne semblent que partiellement correctes. Pour des fluides à viscosité élevée (≈ 0.5 et $2.8 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) et en appliquant une correction, les résultats sont en adéquation avec les valeurs de viscosités attendues. Cependant dans le cas de fluide à viscosité moyenne ($\approx 100 \text{ mPa} \cdot \text{s}$), du bruit dans les données lié à l'instrument de mesure ont fait dévier les valeurs. Par ailleurs, dans le cas de fluides non-newtoniens, les résultats obtenus avec la même correction se sont avérés satisfaisants pour des fluides faiblement rhéofluidifiants. *A contrario*, les mesures effectuées avec des fluides fortement rhéofluidifiants ont présenté les mêmes erreurs que pour les fluides newtoniens à faible viscosité.

La réponse en viscosité de ces liquides newtoniens et non-newtoniens a ensuite été observée avec la seconde géométrie. Les mesures réalisées pour l'ensemble des trois fluides à viscosité constante s'est avérée excellente et ce même à fort taux de cisaillement ($8 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$). L'utilisation de la correction de Weissenberg - Rabinowitsch - Mooney [64] a permis de déterminer la viscosité des fluides rhéofluidifiants, dont les valeurs expérimentales sont quasiment identiques aux valeurs attendues. Grâce au confinement du fluide dû à la géométrie du dispositif, il a été possible d'atteindre des taux de cisaille-

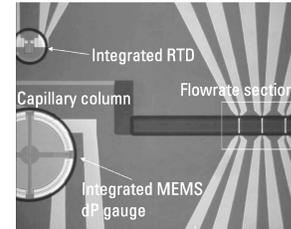


FIGURE 1.25 – Microphotographie d'un rhéomètre basé sur un transducteur MEMS [19].

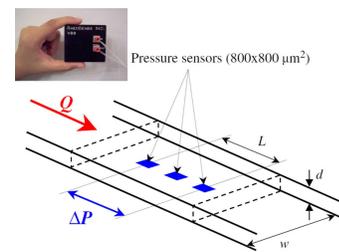


FIGURE 1.26 – Schéma de principe du microrhéomètre VROC de RheoSense [52].

ment proches de 30000s^{-1} , approchant ainsi de la valeur de la viscosité à taux de cisaillement infini.

En conclusion, le microrhéomètre capillaire offre de nombreux avantages en comparaison avec le rhéomètre ARES et de manière plus générale, aux rhéomètres conventionnels. En effet, la gamme de taux de cisaillement est bien plus large avec une géométrie confinée comme celle présentée tant pour les fluides à viscosité constante que pour les liquides rhéofluidifiants. Aucune correction de calibration n'est à apporter contrairement à la géométrie plan-plan présentée dans ce document, seule l'emploi de l'équation de Weissenberg - Rabinowitsch - Mooney est requise pour obtenir la viscosité. Cependant, cette étude montre que la gamme du capteur MEMS de pression absolue limite la gamme de la viscosité du fluide à tester. De plus, cette technique se voit limitée par la gamme de débit permise par le pousse seringue.

1.3.6 Conclusion

Dans cette section consacrée à la présentation des rhéomètres adaptés à la microfluidique, nous avons dressé une liste non exhaustive des outils permettant d'étudier les propriétés physiques des liquides. De cet état de l'art, nous pouvons dégager les traits caractéristiques que devra présenter le capteur qui servira à l'étude de la rhéologie des fluides pour notre dispositif :

- la possibilité d'atteindre des forts taux de cisaillement (de par sa géométrie confinée) afin de mesurer de larges gammes de viscosités.
- l'utilisation de capteurs de pression différentielle.
- un volume de fluide par expérience de quelques millilitres maximum.

La méthode de réalisation de rhéomètre avec capteur de pression intégré proposée par Angelescu et al. [19]-[62] semble répondre à l'ensemble de ces attentes et sera celle que nous retiendrons pour réaliser notre microrhéomètre sur puce. La jauge de pression piezorésistive mesurant la perte de charge le long d'un microcanal semble en effet être un excellent compromis en terme de possibilité de mesure de type *high-throughput* (possibilité d'obtenir des courbes quasi complètes d'écoulement) et d'utilisation d'une faible quantité de liquide.

En outre, grâce à cette méthode de fabrication, il est possible d'intégrer une piezorésistance de mesure de la température, fournissant un paramètre supplémentaire sur le fluide au cours des expériences. Nous aborderons dans le chapitre 3 l'ensemble des paramètres de réalisation ainsi que la caractérisation de ce microrhéomètre.

1.4 Micromélangeurs

1.4.1 Classification des micromélangeurs

Une fois encore, la miniaturisation des systèmes microfluidiques se fait sentir au sein de la réalisation de micromélangeurs. Comprenant l'intérêt de ces dispositifs pour la communauté scientifique comme pour des procédés industriels, la recherche dans les milieux académique et industriel a permis de développer de nouvelles techniques de mélanges, basés sur des systèmes MEMS et également à base de PDMS. On peut alors retrouver ces micromélangeurs dans différents secteurs d'activités tels que la biologie (analyse, séquençage et synthèse de l'ADN), pour les laboratoires sur puce (réactions chimiques basées sur le mélange), ou encore pour la compréhension de phénomènes physiques à l'échelle micrométrique [65]. Les micromélangeurs sont généralement répertoriés selon deux catégories (figure 1.27) : les passifs et les actifs.

Les mélangeurs passifs ne font pas appel à une source d'énergie extérieure. Parmi ces mélangeurs, on peut distinguer plusieurs géométries grâce auxquelles le fluide subit plusieurs étapes de séparation et de re-combinaison grâce à des cellules dites de laminage. Ces cellules vont alors favoriser le phénomène de diffusion en réduisant la longueur de diffusion. D'autres techniques passives sont également utilisées telles que l'advection chaotique ou encore l'utilisation de gouttes pour effectuer les mélanges. Les mélangeurs actifs quant à eux, utilisent une force extérieure pour favoriser le mélange. Parmi les sources de perturbations, on retrouve généralement la pression, la température, les ultrasons ou encore des méthodes faisant appel à l'électro-osmose ou à l'électro-mouillage.

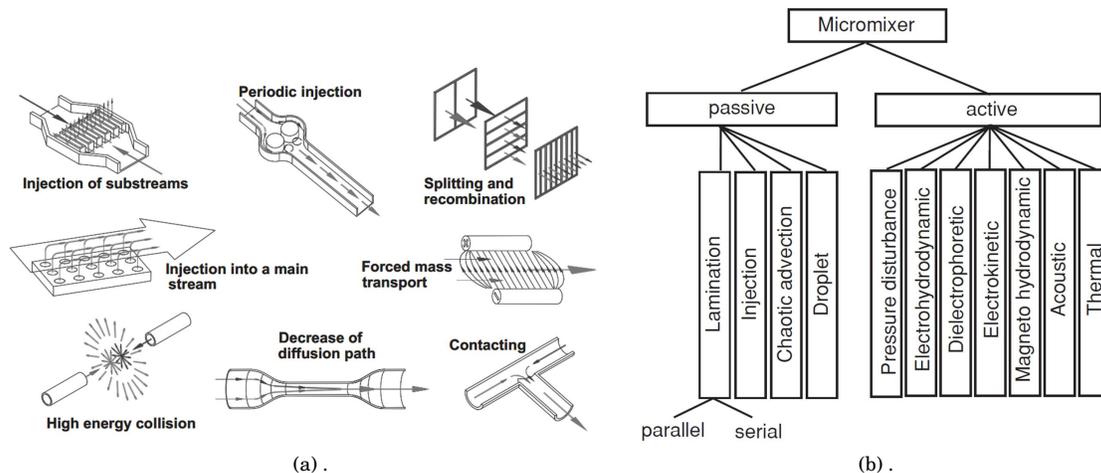


FIGURE 1.27 – **a.** : Schémas de principes de micromélangeurs actifs et passifs [66]. **b.** : Schéma de classification des micromélangeurs [65].

Les différents modèles de micromélangeurs présentés par la suite ne reflètent pas la totalité des méthodes employées à ce jour en terme de mélange. De très bonnes revues [66]-[30]-[65]-[67] proposent des études complètes sur l'ensemble des travaux réalisés avec les micromélangeurs passifs et actifs.

1.4.2 Micromélangeurs passifs

1.4.2.1 Laminage en parallèle

Dans ce type de laminage, la géométrie la plus basique propose une forme en T dans laquelle sont injectés les deux fluides à mélanger (figure 1.28a). Les travaux de Kamholz et al. [68] ont permis de décrire clairement un modèle mathématique de diffusion moléculaire dans une géométrie en T très

simplifiée qui tient compte de l'aspect géométrique du dispositif, du débit imposé et du coefficient de diffusion. Basé sur des mesures de fluorescence optiques, cette étude qualitative a permis d'extraire un modèle quantitatif de prédiction de l'intensité de la solution à travers le canal en fonction des différents paramètres de cette solution. Cependant l'impact des interactions aux parois représente un paramètre non-négligeable sur le coefficient de diffusion des molécules qui n'a pu être clairement défini dans cette étude, suggérant une nouvelle approche de la géométrie de ce dispositif.

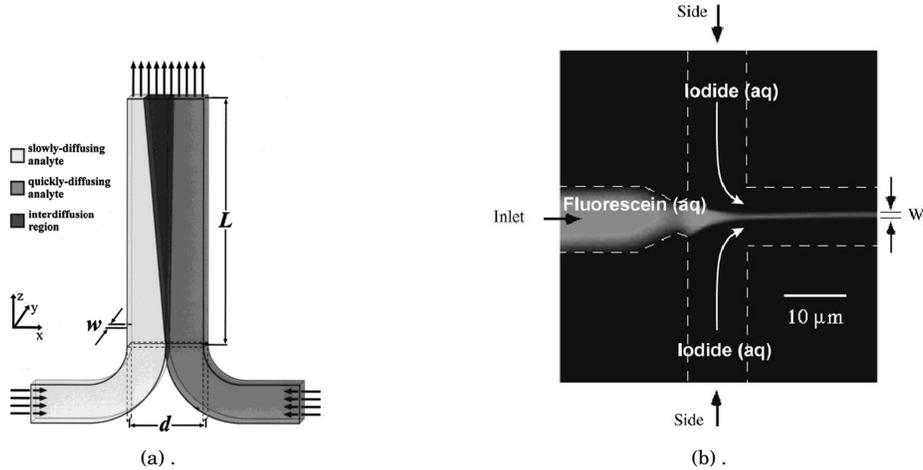


FIGURE 1.28 – **a.** : Schéma de principe d'un mélangeur en forme de T [68]. **b.** : Microphotographie d'un mélangeur à flow-focusing [69].

Parmi les méthodes de laminage en parallèle, on retrouve plusieurs techniques basées sur le même principe que la forme en T mais avec des structures plus complexes. La technique de mélange par *flow-focusing* consiste à envoyer le fluide A par deux entrées de part et d'autre du fluide B, venant ainsi le pincer de façon plus ou moins prononcée (selon la pression à laquelle sont envoyés les fluides) comme indiqué sur la figure 1.28b. Les travaux de Knight et al. [69] ont permis de mettre en avant l'impact du ratio des pressions P_s (side pressure) et P_i (inlet pressure) des deux fluides, noté α (où $\alpha = P_s/P_i$ avec $P_i \approx 34.5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$), sur le temps nécessaire pour obtenir un mélange. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour $\alpha = 1.26$ où le temps de mélange est évalué à environ $10 \mu\text{s}$, temps obtenu en divisant la longueur du jet focalisé par la vitesse du fluide.

1.4.2.2 Laminage séquentiel

Le principe du laminage séquentiel (également appelé laminage à séparation et recombinaison) se base tout comme le laminage parallèle, sur la surface de fluide où la diffusion s'effectue ce qui va permettre de diminuer la longueur de canal nécessaire pour réaliser le mélange. La méthode de laminage va se distinguer par l'utilisation de cellules de laminage qui vont permettre au fluide de se scinder dans un premier temps puis de se recombinaison avant d'être envoyé vers une autre unité de laminage. Cette technique va donc diviser la surface entre les deux fluides pour favoriser le phénomène de diffusion.

Les travaux de Lee et al. [70] proposent un micromélangeur en PDMS (voir figure 1.29) qui permet d'obtenir un mélange dans un état à 90% final après sept unités de laminage, la gamme de débits allant de 0.1 à $1000 \mu\text{L}/\text{min}$ ($0.012 < Re < 120$).

Les travaux de Fang et al. [71] proposent également un micromélangeur à laminage séquentiel (figure 1.30). Ce dispositif présente la particularité d'imposer une séparation et une re-combinaison

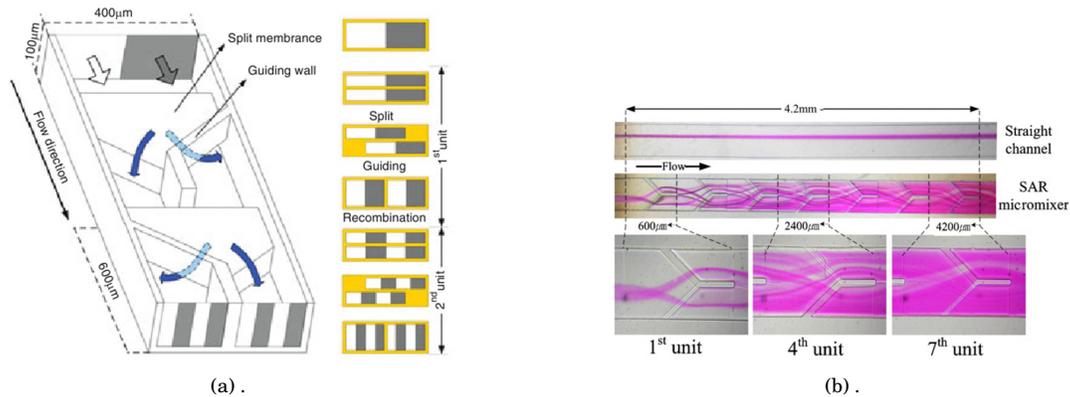


FIGURE 1.29 – **a.** : Vue en coupe d'une cellule de laminage séquentiel. **b.** Comparaison entre le canal droit et les cellules de laminage [70].

ainsi qu'une direction rotative du flux le tout réalisé grâce aux cellules de laminage. Les expériences ont été réalisées à des nombre de Reynolds compris entre 0.01 et 100 et ont permis de mettre en avant l'efficacité de cette géométrie quant aux mélanges réalisés avec des fluides visqueux. Pour trois fluides à différentes viscosités ($0.855-9.2-186\text{mPas}\cdot\text{s}$) les résultats indiquent respectivement 95-89 et 80% du mélange final avec cette géométrie. Les mêmes fluides ont été ensuite utilisés dans un mélangeur à rainures oblique et le pourcentage du mélange final est respectivement 65-52-40%.

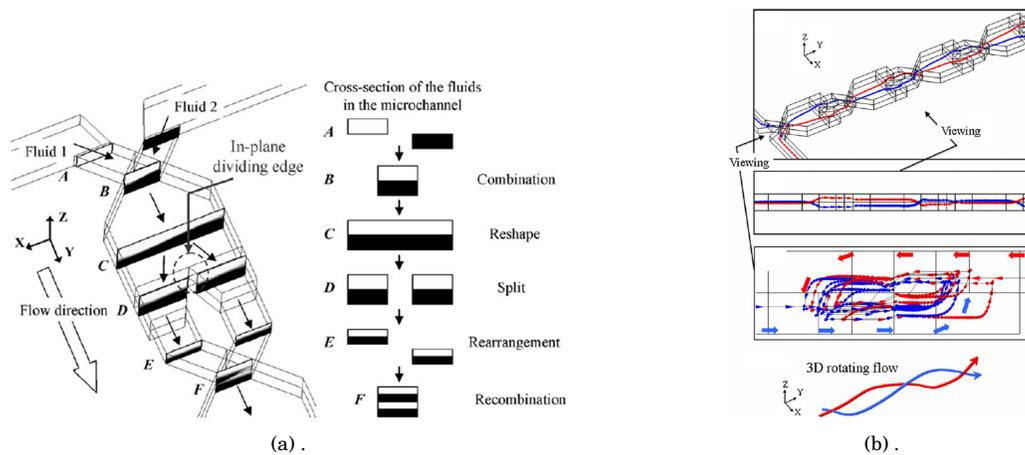


FIGURE 1.30 – **a.** : Vue en coupe d'une cellule de laminage à séparation et re-combinaison. **b.** Respectivement de haut en bas, la trajectoire des deux fluides, vue en coupe selon la direction x , vue en coupe selon la direction y et schéma du parcours rotatif en 3D des lignes de courant [71].

1.4.2.3 Micromélangeurs à base de gouttes

Les microgouttes peuvent également servir comme outils dans le mélange de deux fluides. Plusieurs méthodes de génération de gouttes existent et sont pour la plupart résumées dans la section 1.2. Généralement, les deux techniques les plus usitées pour générer des gouttes dans le cadre d'un mélange sont le *flow focusing* et la *T-junction*.

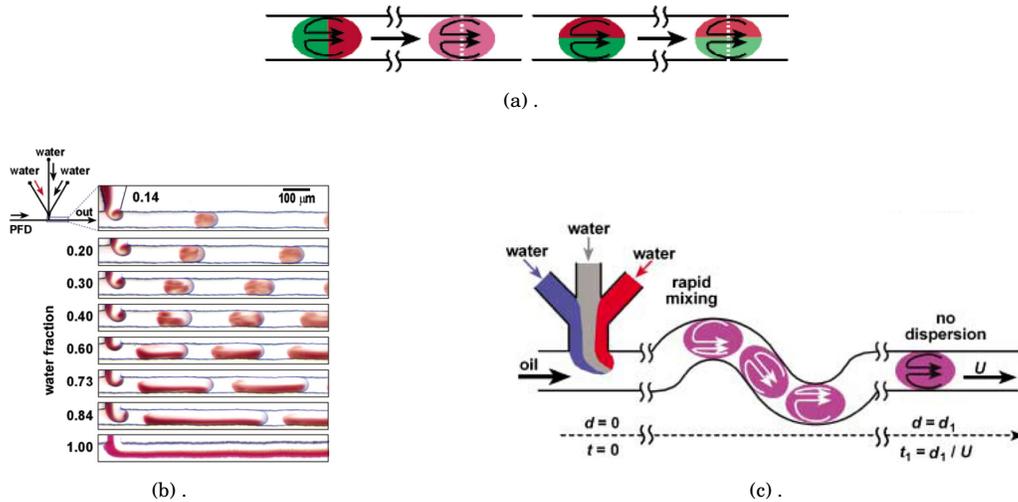


FIGURE 1.31 – **a.** Schémas représentant la circulation du fluide à l'intérieur de la goutte (flèches noires) dans le cas d'un mélange (efficace dans le cas où le colorant et l'eau sont séparés initialement verticalement (schéma de gauche), peu efficace lorsqu'ils sont initialement séparés horizontalement (schéma de droite)). **b.** : Création de gouttes de colorant avec de l'eau dans un canal droit [33]. **c.** Mélange des fluides à l'intérieur des gouttes dans un canal en serpentin [72].

Les travaux de Ismagilov et al. [33]-[72] ont permis de réaliser un dispositif permettant de générer des gouttes à partir d'une géométrie en T. Les gouttes créées à partir d'eau et de colorant sont dispersées dans la phase externe constituée de PFD (perfluorodécane).

Le mélange de fluides à l'intérieur de gouttes s'intensifie lorsque la taille de celles-ci est minimale (diminution de la longueur de diffusion). Dans une géométrie confinée où la goutte est en contact avec les parois du canal (figure 1.31a) il se crée une re-circulation du fluide à l'intérieur de la goutte qui va provoquer le mélange. On note toutefois que la position initiale des fluides dans la goutte par rapport aux parois du canal est essentielle pour réaliser un bon mélange. Dans le cas d'un écoulement de gouttes dans un canal droit (indiqué figure 1.31b), plus la goutte créée est longue (avec les deux phases parallèles aux murs du canal) moins le mélange s'effectue correctement. C'est en effet le confinement des lignes de courant qui garde les deux phases séparées et qui empêche ainsi le mélange de s'effectuer.

A l'inverse, dans le cas d'une géométrie en serpentin (figure 1.31c), les virages du canal imposent une recirculation du fluide non homogène à l'intérieur de la goutte. Ce déséquilibre dans le flux interne de la goutte va donc créer une advection et ainsi permettre aux deux fluides de se mélanger correctement.

1.4.3 Micromélangeurs actifs

1.4.3.1 Instabilité électrocinétique

L'instabilité électrocinétique se manifeste lorsque l'on applique un courant électrique alternatif dans un canal microfluidique dans lequel sont envoyés deux fluides à mélanger. Les oscillations du champ électrique induisent une déformation dans le flux de liquide qui va s'étirer et se contracter et créer des remous. L'instabilité électro-cinétique est généralement employée pour des nombres de Reynolds proches de 1 [66].

Les travaux de Oddy et al. [73] ont permis de réaliser un dispositif muni de deux canaux d'accès aux fluides reliés à un canal principal qui mène à une chambre de mélange laquelle est connectée à deux électrodes (figure 1.32a).

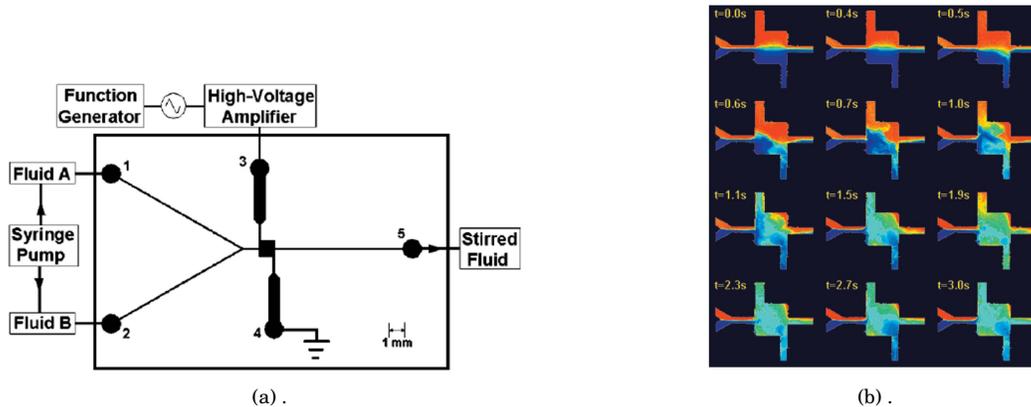


FIGURE 1.32 – **a.** : Schéma de principe d'un micro mélangeur à instabilité électrocinétique. **b.** Evolution du mélange au niveau de la chambre soumise au champs électrique. [73]

La figure 1.32b représente une expérience réalisée par fluorescence où les images dépendantes du temps montrent l'évolution du mélange au sein de la chambre soumise au champs électrique. A partir d'un volume de liquide de $0.1\mu\text{L}$, le mélange s'effectue correctement au bout de 2.5s.

1.4.3.2 Mélanges de gouttes par électromouillage

Les laboratoires sur puce ont de nombreuses fonctionnalités telles que le dosage de réactifs, la dilution, ou encore le mélange. Le principe consiste à appliquer une tension électrique sur des pastilles métalliques constituant le support de la puce sur lequel repose le fluide. En variant la tension d'une électrode à une autre, le liquide va se déplacer de proche en proche, cette méthode porte le nom d'électro-mouillage sur puce (EWOD).

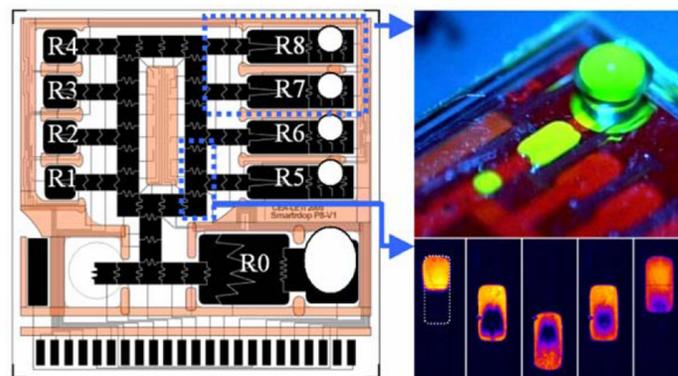


FIGURE 1.33 – Schéma de la puce EWOD. Image droite haut : distribution du liquide fluorescent du réservoir R8. Image droite bas : séquence de mélange de deux fluides positionnés sur deux électrodes. [74].

Les travaux de Y. Fouillet et al. [74] ont permis de réaliser une puce basée sur la technologie EWOD qui permet, entre autre, de réaliser des mélanges entres deux gouttes en les faisant se séparer et

coalescer (figure 1.33). Cette puce présente également d'autres applications spécifiques telles que le contrôle en température, la détection optique ou électrique ou encore la génération de gouttes monodisperses (avec un CV compris entre 1 et 3%). Ce laboratoire sur puce s'inscrit dans une catégorie d'outils microfluidiques très versatiles qui permet de réaliser de nombreuses opérations fluidiques et qui possède un fort potentiel pour devenir un produit commercialisable.

1.4.4 Conclusion

Cette étude des différentes méthodes de mélanges a permis de dégager les principales caractéristiques qui ont été apportées au micromélangeur lors de sa conception :

- Mélangeur situé dans la catégorie des micromélangeurs passifs (aucune source d'énergie externe pour favoriser le mélange).
- Possibilité d'intégration sur un système plus complexe (à long terme, on peut imaginer un dispositif intégrant à la fois un micromélangeur et un rhéomètre).
- Géométrie comprenant à la fois une structure en T où le mélange pourrait commencer à s'effectuer pour arriver sur une géométrie de séparation et de re-combinaison. Cette combinaison de deux géométries favoriserait un gain de temps de mélange avec un maximum d'efficacité en terme de finalisation du mélange en sortie du dispositif.

Les détails de la conception et de la réalisation seront abordés dans le chapitre 4 où le micromélangeur est utilisé pour réaliser des mélanges de fluides à base d'eau et de glycérol, dont la viscosité (variable) sera mesurée par le microrhéomètre.

MOUSSE ET ÉMULSION - FABRICATION D'UN NOUVEAU MICROGÉNÉRATEUR.

Sommaire

2.1	Introduction	48
2.2	Conception des microgénérateurs	48
2.2.1	Description des géométries	48
2.2.2	Principe de production	48
2.3	Réalisation des dispositifs	49
2.4	Caractérisation des dispositifs	50
2.4.1	Protocole expérimental	50
2.4.2	Production d'émulsion : comparaison entre les deux géométries	53
2.4.3	Production de mousses : comparaison entre les deux géométries	55
2.5	Stabilisation des mousses générées - Variations des paramètres expérimentaux	57
2.6	Modèle semi-empirique de production	59
2.6.1	Principe de fabrication d'une bulle	59
2.6.2	Influence de la géométrie lors de la création d'une bulle	62
2.6.3	Modèle semi-empirique de génération d'une bulle	64
2.7	Conclusion	66

2.1 Introduction

A l'issue de l'étude bibliographique sur les différentes méthodes existantes pour générer des dispersions (fluides complexes), il a été entrepris de réaliser un microgénérateur de mousses et d'émulsions visant à maîtriser l'ensemble des paramètres pour contrôler au mieux la production. Dans ce chapitre, nous présentons les étapes réalisées en matière de conception, réalisation et caractérisation d'un microgénérateur de dispersions de type *high-throughput*, inspirées en partie des travaux de Sugiura et al. [17].

Cette étude représente pour nos travaux, la première étape dans la réalisation d'un dispositif permettant la création et la caractérisation *in-situ* de fluides complexes. Dans cette optique nous avons choisi la méthode de génération par réseau de microcanaux (*Microchannel Emulsification* ou MCE) en vertu de sa capacité à dissocier de manière indépendante la taille des bulles/gouttes générées et la fréquence de production en sortie de dispositif.

Nous présentons dans ce chapitre deux géométries novatrices en terme de conservation et d'évacuation des bulles/gouttes générées que nous comparons afin de déterminer celle qui permet d'obtenir des dispersions stables et monodisperses en minimisant les phénomènes de vieillissement et de coalescence. Nous présentons également un protocole expérimental de stabilisation permettant de créer des mousses/émulsions stables et monodisperses, sujettes à un vieillissement rapide. Enfin, nous présentons un modèle semi-quantitatif permettant d'expliquer la phénoménologie riche et parfois contre-intuitive de cette méthode de production de dispersions.

2.2 Conception des microgénérateurs

2.2.1 Description des géométries

Basée sur la méthode de génération MCE, le site de production du générateur que nous proposons dans cette étude s'inspire de l'architecture du dispositif développé par Sugiura et al. [17]. L'élément innovant dans cette structure réside dans sa géométrie qui permet de réaliser et de conserver les dispersions en géométrie confinée, contrairement aux travaux antérieurs où la génération se fait dans des milieux non-confinés.

L'étude de l'évolution *in-situ* d'une mousse ou d'une émulsion liée à des phénomènes de mûrissement ou de coalescence au sein d'un microgénérateur, est encore peu explorée dans la littérature (voir chapitre 1.2). Nous proposons dans la réalisation de ce dispositif, une géométrie où les dispersions sont d'une part conservées (dans le canal de la phase continue) puis évacuées à travers un canal d'extraction (canal de sortie). Afin de pouvoir mesurer l'impact du canal de sortie sur les phénomènes liés à l'évolution des dispersions au cours du temps, nous avons conçu deux structures d'évacuation présentées en figure 2.1. La première dite "Focused", permet une évacuation des dispersions à travers un canal droit (figure 2.1a), la seconde via un réseau de canaux adoptant une forme fractale, d'où son nom "Fractal" (figure 2.1b).

2.2.2 Principe de production

Le principe de génération est le suivant : la phase continue est envoyée de part et d'autre du réseau de microcanaux pendant que la phase dispersée est injectée dans une chambre. Lorsque cette chambre est totalement remplie de cette phase, le gas/liquide emprunte le réseau de canaux pour finalement arriver sur les terrasses respectives à chaque canal, aboutissant sur une transition *2D-3D* formant une bulle/goutte. La phase dispersée va en effet venir s'étaler telle une crêpe *2D* jusqu'à finalement venir déborder sur le bord de la terrasse (figure 2.2a). Le volume de ce débordement va continuer de croître jusqu'à finalement être "pincé" (phénomène de *pinch-off*) par la phase continue transformant ainsi la crêpe *2D* en sphère *3D* (phénomène provoqué par une instabilité capillaire).

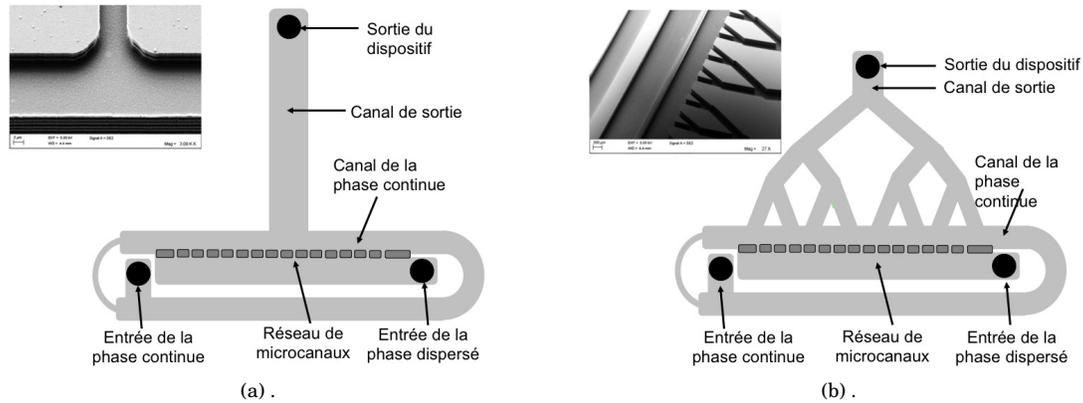


FIGURE 2.1 – Schémas simplifiés des deux dispositifs avec photographies prises au microscope électronique à balayage (MEB) illustrant les deux géométries du canal de sortie. **a.** : Géométrie "Focused". **b.** : Géométrie "Fractal".

Une fois la goutte/bulle libérée (figure 2.2b), le flux de la phase dispersée se présente à nouveau jusqu'au bord de la terrasse, reproduisant ainsi le même schéma que précédemment, le phénomène se reproduisant de façon périodique. Cette transition 2D à 3D permet alors une formation spontanée des bulles/gouttes par tension de surface. Cette méthode ne nécessite qu'une faible quantité d'énergie pour pouvoir générer une bulle/goutte en comparaison avec les techniques de production classiques [17].

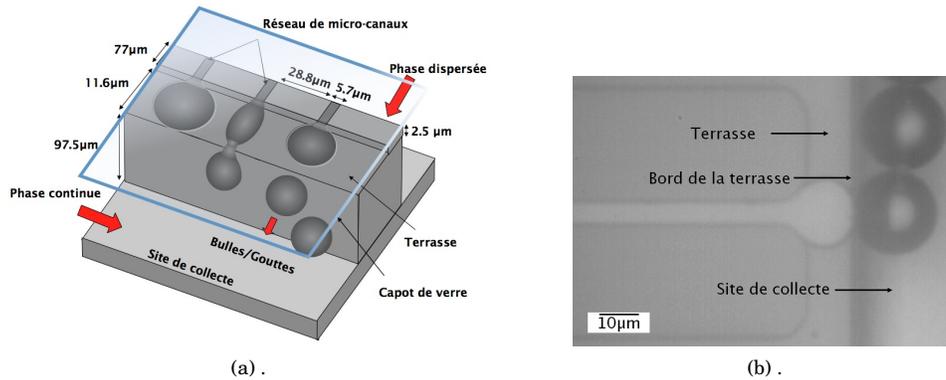


FIGURE 2.2 – Génération de dispersions au niveau de la terrasse. **a.** : Etapes de fabrication d'une bulle/goutte. **b.** : Micro photographie au niveau de la terrasse lors de la production d'une bulle.

2.3 Réalisation des dispositifs

Les deux dispositifs ont été fabriqués en utilisant la technologie MEMS au sein du département SMM de l'ESIEE Paris. La géométrie de la terrasse et des canaux a été obtenue après plusieurs étapes de gravures profondes successives (DRIE). La taille finale du dispositif est de $2 \times 2 \text{ cm}$ (figure 2.3a).

On notera que sur chacun des générateurs, le canal de la phase continue (gravé à $100\mu\text{m}$ de profondeur) a été réduit de largeur comme indiqué sur la figure 2.3b de façon à conserver la même résistance hydrodynamique sur l'ensemble du canal permettant ainsi un afflux homogène de part et d'autre du réseau de microcanaux. La phase dispersée est envoyée dans le canal de la phase dispersée qui est lui aussi gravé à $100\mu\text{m}$ de profondeur. Le réseau de microcanaux est gravé moins profondément ($2.5\mu\text{m}$) et aboutit sur la terrasse gravée à la même profondeur (figure 2.2a).

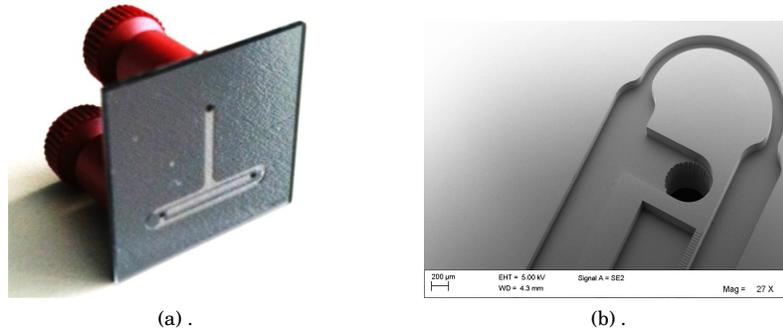


FIGURE 2.3 – **a.** : Microgénérateur à canal de sortie droite avec les nanoports positionnés. **b.** : Photographie du dispositif au niveau du canal de la phase continue (image réalisée au MEB).

Les trous d'accès (phase dispersée, continue et sortie) ont eux aussi été obtenus par une étape de DRIE faite sur la face arrière des dispositifs. Pour étanchéifier les dispositifs, le silicium gravé a été soudé à un wafer de verre en utilisant la technique de soudure anodique. Cela résulte en un générateur de mousse/émulsion confiné capable de collecter les dispersions générées au sein de l'architecture, à l'instar des autres générateurs proposés dans les travaux de Sugiura et al. [17],[43],[44] qui eux rejettent leur mousse/émulsion directement après leur création.

Sur un wafer 4" de silicium, il est possible de fabriquer jusqu'à 16 dispositifs, la taille critique de chacun étant de 2cm^2 . Cette taille est imposée par le diamètre des anneaux adhésifs utilisés pour fixer les connecteurs microfluidiques (nanoports *Upchurch Scientific*), visibles sur la figure 2.3a.

2.4 Caractérisation des dispositifs

2.4.1 Protocole expérimental

2.4.1.1 Acquisition des images

L'ensemble des images et des vidéos a été réalisé à partir d'un microscope optique inversé (Leica DMI 5000M, avec un objectif 50x) et d'une caméra rapide (Basler A504k) prenant des clichés à une vitesse pouvant aller jusqu'à 20 000 images par seconde (fps). Les vidéos ont été acquises avec le logiciel *NI Vision Assistant 8.6 Software* (National Instrument, USA) et la détermination des diamètres de bulles/gouttes avec le logiciel *Image J* (National Institute of Health, USA).

Les masques utilisés pour les étapes de photolithographie ont été réalisés avec le logiciel de CAD *Coventor* (Coventor Inc, USA) en utilisant le langage Tcl/Tk (script de programmation) afin d'automatiser la procédure de génération des masques.

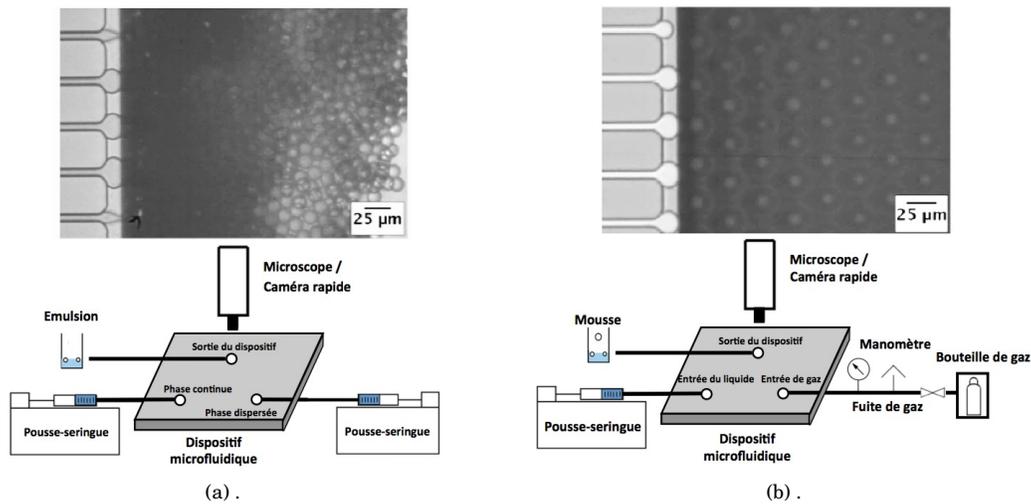


FIGURE 2.4 – Photographies de génération de dispersions avec le schéma de la procédure expérimental associé. **a.** : Génération d'émulsion. **b.** : Génération de mousse.

2.4.1.2 Sites d'observations

Comme indiqué sur la figure 2.4, les dispositifs sont positionnés sur le microscope. La plaque de verre permet d'avoir accès à la visualisation de la production des dispersions qui sera filmée par le biais de la caméra rapide positionnée sur le côté du microscope. Pour s'assurer de ne pas mesurer le diamètre de la même bulle/goutte dans la détermination du coefficient de variation (CV), les images ont été prises à intervalle régulier d'une seconde. Plusieurs sites de productions ont été observés de façon à pouvoir étudier le comportement des mousses/émulsions générées.

Les sites d'observation indiqués sur la figure 2.5 sont le canal le plus éloigné qui produit (pour observer la stabilité des dispersions générées sans altérations provoquées par les sites voisins), ainsi que la sortie de chacun des deux dispositifs (afin de mesurer le diamètre des dispersions et pouvoir ainsi déterminer le coefficient de variation global sur l'ensemble du trajet production-sortie). On notera que le premier site d'observation (le canal le plus éloigné) peut différer d'une expérience à l'autre. Lorsque la phase dispersée est injecté, des ménisques vont apparaître à l'entrée de chacun des canaux. Si la pression est suffisamment élevée, le ménisque va avancer le long du canal pour arriver sur la terrasse est former une bulle. A cet instant la pression dans la chambre de la phase dispersée diminue, et n'est plus suffisamment élevée pour que l'ensemble des canaux produise. De plus, un agglomérat de dispersions dû à un phénomène de bouchon communément appelé *jamming-effect* se produit généralement au milieu du canal de collecte. Cette saturation de bulles/gouttes va alors empêcher les sites de produire. On a donc une configuration aléatoire des sites de production, expliquant pourquoi le premier canal situé à l'extrême droite de la terrasse qui produit varie à chaque expérience (alternance entre le premier, le second et le troisième). Les mesures au milieu du canal de collecte sont donc très difficile à réaliser (image centrale de la figure 2.5), étant donné la promiscuité de chaque bulle/goutte. Cependant, nous verrons par la suite que cet effet est très prononcé pour la géométrie "Focused" et que pour la géométrie "Fractal", ce phénomène est nettement atténué grâce à la forme particulière du canal de sortie.

Les paramètres du microscope nous ont permis d'atteindre une échelle maximum de $8.2 \text{ pixels}/\mu\text{m}$ ce qui correspond à la limite de diffraction optique du microscope. Ce ratio impose donc une erreur de mesure de 1.2% pour la mesure du diamètre des gouttes (le diamètre moyen étant de $10 \mu\text{m}$) et de 0.7% pour les bulles (leur diamètre moyen étant de $18 \mu\text{m}$).

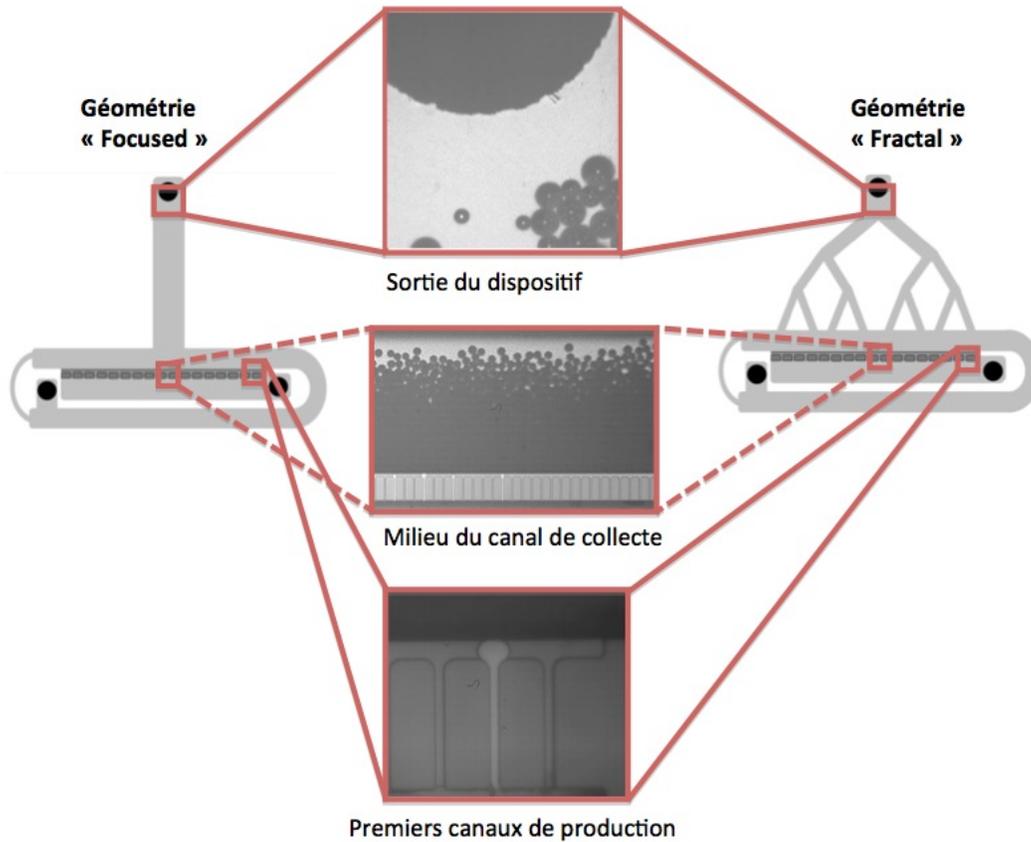


FIGURE 2.5 – Sites d'observations pour la caractérisation de dispersions sur les deux géométries.

La fréquence de génération a pu être déterminée grâce à la caméra rapide dont les films ont été réalisés à des vitesses allant jusqu'à 20 000 *fps*. Un simple calcul de nombres d'images entre chaque évènement avec la vitesse d'acquisition a permis de déterminer la fréquence de production.

2.4.1.3 Préparation des solutions dans le cas des émulsions

Pour la préparation des solutions utilisées pour les émulsions, la phase continue est un mélange d'eau dé-ionisée avec 1% wt/wt de sodium dodecyl sulphate (SDS) (Fisher Scientific, France) rajouté en tant que surfactant pour stabiliser l'émulsion. Cette concentration correspond à 4.2 fois la concentration micellaire critique (CMC) afin de réduire la tension de surface entre les deux phases au maximum, limitant ainsi les risques de coalescence. L'hexadécane a été utilisé comme phase dispersée (pureté > 99%, VWR, France).

Pour les expériences de génération d'émulsions (figure 2.4a), les deux phases ont été injectées avec des seringues de 2.5mL (VWR, France), à l'aide de pousses-seringues programmables (Harvard Apparatus PHD, USA). Les débits varient de 5 à 15 $\mu\text{L}/\text{min}$ pour la phase continue et de 0.1 à 2 $\mu\text{L}/\text{min}$ pour la phase dispersée.

2.4.1.4 Préparation des solutions dans le cas des mousses

Pour les expériences de génération de mousse, la phase continue est un mélange d'eau DI et de glycérol à différents niveaux de concentration (0-30-60% glycérol wt/wt eau DI), correspondant respectivement, pour une température ambiante de 25°C , à des viscosités de 0.95, 2.35 et $10.1\text{mPa}\cdot\text{s}$, respectivement avec 1.0% wt/wt de SDS pour stabiliser l'émulsion. La phase continue a été injectée à des débits allant de 20 à $100\mu\text{L}/\text{min}$ en utilisant un pousse seringue programmable.

Les gaz C_2F_6 et le N_2 , (Air Liquide Electronics Materials, France) ont respectivement été utilisés comme phases dispersées. Chacun des gaz a été contrôlé avec un régulateur de pression relié à un manomètre numérique (Keller, Suisse) et injecté à l'entrée de phase dispersée du dispositif (figure 2.4b). Une petite fuite de gaz a été introduite avant le manomètre pour assurer la stabilité de la pression imposée par le régulateur de gaz.

2.4.2 Production d'émulsion : comparaison entre les deux géométries

La production d'émulsion a été observée à des débits de phase dispersée allant de 0.1 à $2\mu\text{L}/\text{min}$ et de phase continue allant de 5 à $15\mu\text{L}/\text{min}$ pour la géométrie "Focused" et "Fractal". Ces expériences ont permis dans un premier temps de rendre compte des performances des dispositifs en terme de fréquence de production par canal, de taille des bulles/gouttes produites et de leur coefficient de variation (figure 2.6 et figure 2.7).

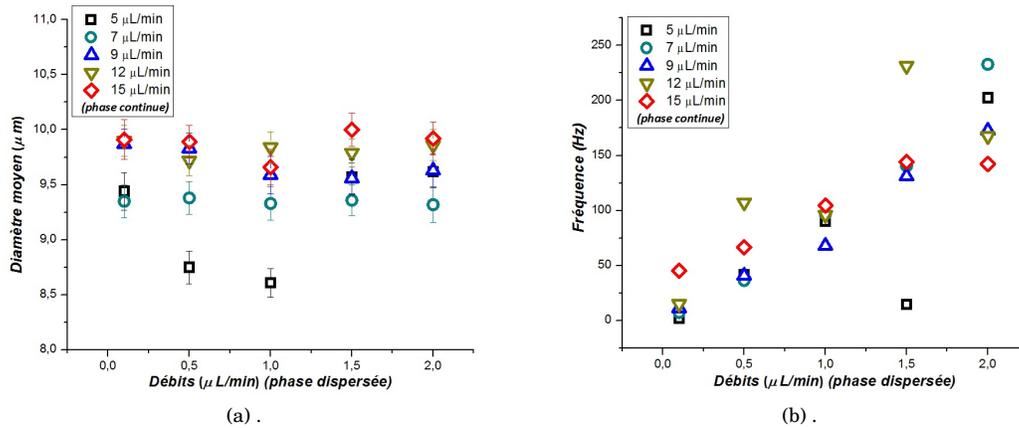


FIGURE 2.6 – Diamètres moyens et fréquences de production pour la génération d'émulsion avec la géométrie "Focused". **a.** : Diamètres moyens des gouttes en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue. **b.** : Fréquences de production des gouttes par canal en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue.

Cette première série de mesures a permis de confirmer le point fort de cette méthode de production commune aux deux générateurs "Focused" et "Fractal", quant au fait que la taille des dispersions générées soit indépendante de la fréquence de production. En effet, en observant les figures 2.6 et 2.7, on note que malgré l'augmentation du débit de la phase interne (0.1 à $2\mu\text{L}/\text{min}$), le diamètre des gouttes reste constant pour chaque débit de la phase continue. La fréquence de production quant à elle se voit augmenter en conséquence, mettant ainsi en évidence le contrôle indépendant de ces deux paramètres. Ce phénomène souligne donc que contrairement aux autres types de générateurs classiques (*T-junction* et *flow-focusing*) dans lesquelles la dynamique de fabrication d'une goutte est basée sur une instabilité de Rayleigh, la production est ici entièrement gérée par une transition *2D-3D* imposée par la géométrie du site de production.

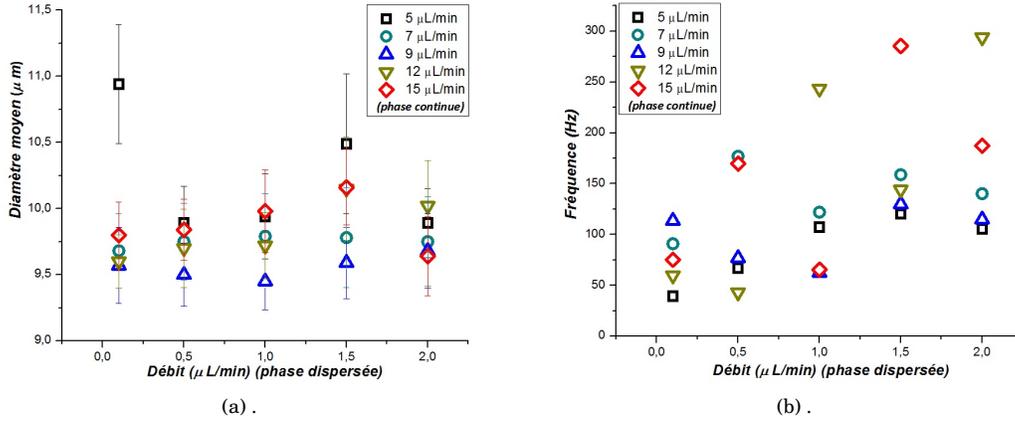


FIGURE 2.7 – Diamètres moyens et fréquences de production pour la génération d'émulsion avec la géométrie "Fractal". **a.** : Diamètres moyens des gouttes en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue. **b.** : Fréquences de production des gouttes en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue.

Les deux géométries présentent la même architecture du site de production, ce qui entraîne exactement les mêmes tailles de gouttes/bulles pour les deux dispositifs. Les données pour caractériser la production ont été recueillies au niveau du canal de production le plus éloigné, ce qui a permis d'observer clairement la taille des gouttes résultantes, sans interactions avec les autres gouttes dans le canal de collecte. Les données acquises (figure 2.8a) ont démontré que les deux dispositifs permettent une production d'émulsion parfaitement maîtrisée avec des gouttelettes d'environ $10\mu\text{m}$ générées et avec un très faible coefficient de variation ($\text{CV} \approx 1.5\%$). Les fréquences de production pour les émulsions sont situées entre 50 et 300Hz par canal. Il ressort de la figure 2.8a que la géométrie "Fractal" conduit à de meilleurs résultats en matière de CV à la sortie du dispositif que la géométrie "Focused" (d'au moins un facteur 3). Le diamètre et le CV ne dépendent ni des débits de la phase continue ou dispersée, ce qui prouve la robustesse de production de ce type de dispositif (où la taille des gouttes est contrôlée principalement par des paramètres géométriques), par contraste avec d'autres types de géométries tels que la *T-junction* ou encore le *flow focusing*.

Théoriquement, chacun des 256 canaux de production doit produire de la même manière, impliquant une taille similaire des gouttes avec le même CV. Cependant, nous avons pu observer lors de nos expériences que la géométrie peu propice à une bonne évacuation des dispersions en milieu de canal de production mène à des phénomènes de vieillissement tels que la coalescence. Il se crée donc un agglomérat de gouttes (effet de bouchon) au contact du rebord de la terrasse, empêchant la création de nouvelles gouttes dans cette région du canal.

La figure 2.8b montre les histogrammes de tailles des gouttes sur le site de production et à la sortie du dispositif pour les deux géométries (indiquées figure 2.5). On remarque une production de gouttes très monodisperse avec un diamètre moyen de $9.4\mu\text{m}$ pour les deux géométries, tandis que la distribution de taille à la sortie du dispositif "Focused" est située entre approximativement entre 7.5 et $13\mu\text{m}$ avec un maximum à $11.8\mu\text{m}$ qui correspond au diamètre de deux gouttes qui auraient coalescées. La distribution de taille en sortie du dispositif "Fractal" se situe approximativement entre 10 et $12\mu\text{m}$ est plus symétrique et plus étroite que celle du "Focused".

Ceci résulte de la nature de la géométrie du canal de sortie qui permet une meilleure évacuation grâce à sa forme de fractale, réduisant ainsi le phénomène de bouchon et, par la suite, la coalescence. Lorsque la concentration de gouttes est trop dense dans le canal de collecte, la production

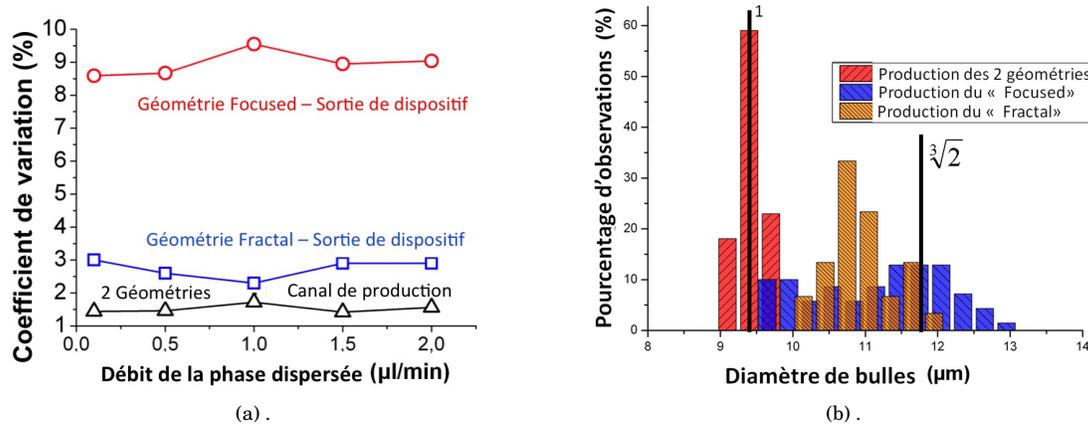


FIGURE 2.8 – Analyse de la production d'émulsion avec les 2 dispositifs. **a.** : Comparaison de coefficient de variation entre les 2 géométries pour la production d'émulsion (Débits du C_{16} allant de 0.1 à 2 µL/min et de 9 µL/min pour l'eau DI). **b.** : Distribution de la taille des gouttes au niveau du canal de production et à la sortie de chaque dispositif pour les 2 géométries (le débit du C_{16} est de 0.1 µL/min et celui de l'eau DI est de 5 µL/min).

peut être affectée du fait que la phase dispersée doit pousser les gouttes existantes afin d'en créer de nouvelles, ce qui a pour effet d'augmenter la coalescence et donc la variation du diamètre à la sortie du générateur. La géométrie "Fractal", grâce à ses multiples canaux, permet une évacuation plus "aisée" que pour la géométrie "Focused". Cela a, comme le montre les données, un impact direct sur le CV et sur la distribution de taille.

Par la suite, les deux dispositifs seront utilisés pour la génération de bulles. Cela permettra d'observer l'influence de la géométrie fractale pour des phénomènes de vieillissement d'une bulle liés à l'efficacité de l'évacuation de la mousse générée.

2.4.3 Production de mousses : comparaison entre les deux géométries

Les expériences ont montré que la production de mousse monodisperse est beaucoup plus difficile à réaliser que génération d'émulsion. En effet, la phénoménologie associée est plus complexe du fait, d'une part, de la compressibilité du gaz, et d'autre part de sa solubilité élevée, conduisant à d'autres mécanismes de vieillissement. Plusieurs phénomènes physiques impliquant un vieillissement rapide de la mousse comme la diffusion du gaz contenu dans une bulle ou le mûrissement, ont entraîné un grand coefficient de variation de la mousse lors de l'évacuation.

Les deux géométries ont montré un comportement similaire lors de la production avec un très faible CV ($\approx 1.5\%$) au niveau du canal de production. Cependant, la distribution de la taille de bulles se dégrade rapidement et de manière significative avec le CV qui atteint des valeurs de 40% à la sortie du dispositif, ce qui confirme la difficulté de produire des mousses monodisperses stables avec de petites tailles de bulles. La raison en est que les variations de rayon, même petites, impliquent une différence de pression de Laplace significative à l'intérieur des bulles, qui est une force motrice pour la diffusion de gaz de petites bulles vers les plus grandes.

Nous avons réalisé une série d'expériences dans laquelle nous avons ajouté du glycérol dans la phase continue à différentes concentrations (0-30-60%). La distribution de taille des diamètres mesurés en sortie du dispositif a montré une gamme se situant entre 13 et 45 µm (selon de la concentration de glycérol). Quant à la fréquence de production par canal, elle s'étend dans une plage comprise entre 7 et 2500 Hz, en fonction des conditions. Des fréquences supérieures à 4000 Hz par canal ont été

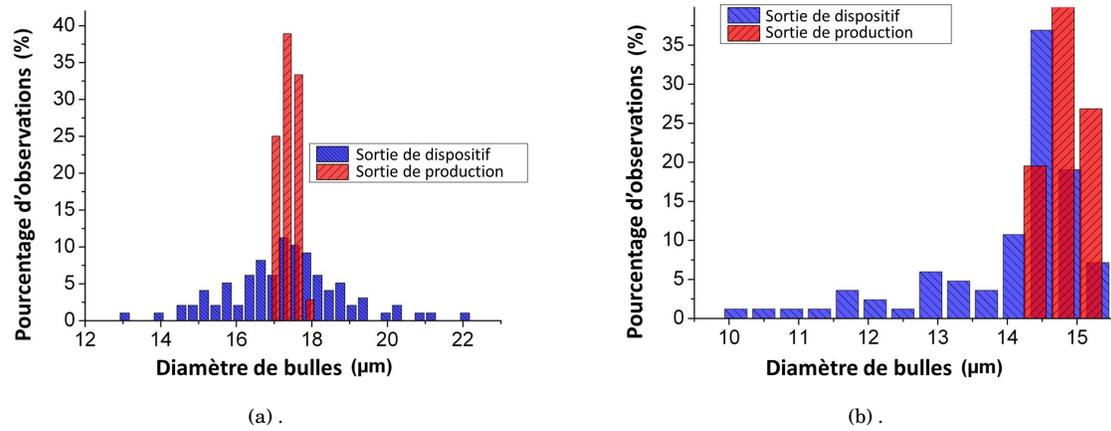


FIGURE 2.9 – Analyse de la production de mousse avec les 2 dispositifs. **a.** : Distribution des diamètres des bulles pour la géométrie "Fractal" au niveau du canal de production et à la sortie du dispositif (Phase continue : eau DI 1 wt % SDS avec un débit de $56.6\mu\text{L}/\text{min}$ - Phase dispersée : N_2 à une pression de 0.4bar). **b.** : Distribution des diamètres des bulles pour la géométrie "Focused" au niveau du canal de production et à la sortie du dispositif (Phase continue : SDS 1% wt eau DI avec un débit de $100\mu\text{L}/\text{min}$ - Phase dispersée : N_2 à une pression de 0.6bar).

enregistrées sur un dispositif où la profondeur de gravure des microcanaux était plus petite ($2\mu\text{m}$ au lieu de $2.5\mu\text{m}$), ce qui suggère que des débits plus élevés sont possibles pour ce type de géométrie. Etant donné que le dispositif possède 256 sites de production, des fréquences supérieures à 10^6Hz seraient théoriquement possibles.

Les deux graphiques de la figure 2.9 montrent la distribution de taille des bulles au niveau du canal de production (histogrammes rouges), et à la sortie du dispositif (histogrammes bleus) pour chacune des deux géométries. La largeur de la distribution au niveau du canal de production est étroite dans les deux cas, ce qui est un signe de distribution de bulles monodisperses ($\text{CV} \simeq 1.5\%$).

La figure 2.9a montre la distribution de taille au niveau du canal de production et à la sortie du dispositif pour la géométrie "Fractal", avec des tailles allant de environ 13 à $22\mu\text{m}$. Les expériences ont été réalisées à 0.4bar (proche du seuil de production) ce qui implique que seuls quelques uns des canaux soient actifs, et qu'il n'y ait pas d'interférences avec d'autres canaux sur la production d'un canal individuel. La distribution de sortie de dispositif est symétrique. Ceci indique un vieillissement de la mousse par diffusion gazeuse (induite par la pression de Laplace) des bulles les plus petites vers les plus grosses plutôt que par un phénomène de coalescence. Cette observation est confirmée par l'absence de pic majeur à $2^{1/3}$ fois le diamètre moyen de production, ce qui aurait été une caractéristique de la coalescence (phénomène observé dans le cas des émulsions).

La figure 2.9b montre la distribution de taille du dispositif à géométrie "Focused" allant de 10 à environ $16\mu\text{m}$. La distribution de sortie n'est pas symétrique et représente une courbe clairement décalée vers la gauche, ce qui correspond à une plus grande proportion de bulles de petits diamètres. Ceci est caractéristique de diffusion de gaz et de dissolution de bulles dans le liquide, ce qui est cohérent du fait que les bulles restent bloquées dans le canal de collecte du dispositif étant donné sa géométrie peu propice à une bonne évacuation.

La figure 2.10a représente l'évolution du diamètre moyen des bulles pour des différentes solutions visqueuses, en fonction du débit de la phase continue. Le diamètre des bulles varie de moins de

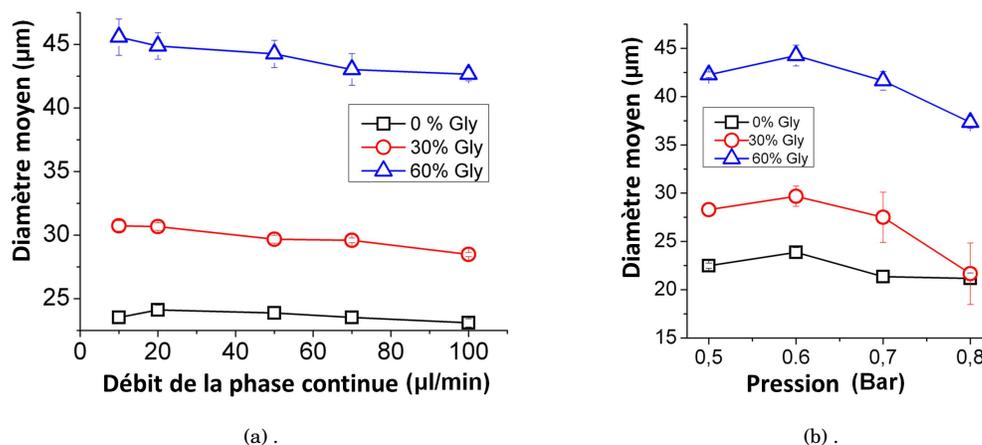


FIGURE 2.10 – Comportement du diamètre moyen des bulles en fonction de la pression et du débit pour les 2 dispositifs. **a.** : Diamètre moyen des bulles au niveau du canal de production en fonction du débit de la phase continue pour une pression constante (0.6 bar) avec différentes concentrations de glycérol de la phase continue (0-30-60% wt/wt). **b.** : Diamètre moyen des bulles au niveau du canal de production en fonction de la pression du gaz à débit constant de la phase continue : 50 µL/min (SDS 1% wt/wt glycérol 0-30-60% wt/wt eau DI).

10% pour un débit augmenté d'un facteur 10, ce qui confirme en outre que, dans cette géométrie, la taille des bulles est peu sensible aux paramètres de fonctionnement. Il ressort également de la figure 2.10a que le rayon de la bulle croît avec l'augmentation de la concentration de glycérol, ce qui est cohérent avec l'hypothèse que la dynamique de pincement soit relative à la viscosité de la solution, et donc que des viscosités plus élevées entraînent un temps de pincement plus long ce qui a pour effet d'augmenter le temps d'inflation de la bulle.

La figure 2.10b quant à elle reflète le comportement du diamètre des bulles en fonction de la pression de gaz et de la viscosité de la solution, pour un débit fixe de la phase continue. Le comportement observé est surprenant et contre-intuitif. En effet, au lieu de croître avec la pression du gaz appliquée (comme on aurait pu s'y attendre en raison de l'augmentation du débit de gaz dans la phase de pincement), le diamètre des bulles montre dans un premier temps une augmentation avec la pression, avec un maximum atteint à environ 0.6 bar, puis diminue malgré la pression qui continue de croître. Un modèle phénoménologique est présenté dans la section 2.6 qui permet d'expliquer ce comportement en tenant compte des différents paramètres tels que la longueur de pincement, le rayon de courbure de la bulle et de la ligne de courbure lors du pincement.

2.5 Stabilisation des mousses générées - Variations des paramètres expérimentaux

Afin d'améliorer la qualité de la production de mousse en réduisant les phénomènes de vieillissement (diffusion dans le fluide environnant, coalescence, grossissement par diffusion de gaz entre les bulles de diamètres différents), plusieurs paramètres ont été étudiés tels que l'impact de la concentration de surfactant, la nature du gaz, et la viscosité de la phase continue.

Dans une première série d'expériences (tableau 2.1), la concentration de SDS a été variée de 0.18 à 4.8% (correspondant respectivement à 0.75 fois la concentration micellaire critique (CMC) et 20 fois la CMC). Nous avons observés que, à des concentrations en dessous de la CMC, la coalescence était le mécanisme de vieillissement dominant, résultant dans un faible CV. Afin de produire des mousses relativement monodisperses, la concentration en tensioactif doit être supérieure à sa CMC.

Les meilleurs résultats ont été obtenus avec 1% de SDS correspondant à 4.2 fois la CMC. L'augmentation de la concentration en tensioactif améliore le CV dans le milieu du canal de collecte, mais n'a eu aucun effet sur le CV de la mousse en sortie du dispositif. L'agglomération de bulles dans le canal de sortie n'a en effet permis d'observer aucune amélioration dans le CV.

TABLE 2.1 – Effet de la concentration du SDS sur le diamètre moyen des bulles et sur le CV à différents sites d'observation.

Concentration de SDS	4.8 % (20 x CMC)		1 % (4.2 x CMC)		0.24 % (1 x CMC)		0.18 % (0.75 x CMC)	
	Diamètre moyen (μm)	CV (%)	Diamètre moyen (μm)	CV (%)	Diamètre moyen (μm)	CV (%)	Diamètre moyen (μm)	CV (%)
Canal de production	18.92	1.67	17.42	1.33	16.54	1.50	16.26	1.30
Canal de collecte	19.71	2.86	16.80	11.88	14.22	17.08	13.85	24.23
Sortie du dispositif	15.91	21.74	17.36	18.85	14.97	36.03	13.66	37.37

Dans une seconde série d'expériences (tableau 2.2), le type de gaz a été modifié. Le gaz N_2 a été remplacé par du C_2F_6 , dont la solubilité et la diffusivité dans l'eau est significativement plus faible [75]. Cela permet ainsi de réduire les phénomènes de vieillissement de mousse afin d'améliorer la monodispersité à la sortie du dispositif. De nouvelles expériences ont été réalisées dans les mêmes conditions que précédemment à savoir une pression constante de 0.4bar et un débit constant de $56.6\mu\text{L}/\text{min}$ (SDS 1% wt/wt eau DI). Les résultats ont montrés que le CV des bulles produites est quatre fois plus faible avec le C_2F_6 qu'avec le N_2 dans le milieu du canal de collecte. Cependant, à la sortie du dispositif, le CV de la mousse avec le C_2F_6 augmente pour finalement atteindre le même que celui du N_2 . Le C_2F_6 améliore le mûrissement par diffusion dans le liquide mais pas celui dû à la diffusion entre les bulles. Nous pouvons donc en conclure que la modification de la nature du gaz à lui seul ne suffit pas à assurer une monodispersité de la production en sortie de dispositif, ce qui suggère la nécessité d'ajouter un autre élément pour stabiliser la mousse au cours de son évolution à partir du site de production jusqu'à la sortie du dispositif.

TABLE 2.2 – Impact de la nature du gaz sur la production à différents sites de production.

1.0 wt % SDS	C_2F_6		N_2	
	Diamètre moyen (μm)	CV (%)	Diamètre moyen (μm)	CV (%)
Canal de production	20.57	1.20	17.42	1.33
Canal de collecte	18.87	3.0	16.80	11.88
Sortie du dispositif	19.70	17.5	17.36	18.85

Du glycérol a donc été ajouté à la solution de la phase continue (tableau 2.3) en changeant le mélange SDS 1% wt/wt eau DI par SDS 1 % wt/wt glycérol 50.0 % wt/wt eau DI, avec une viscosité à 25°C de $4.98\text{ mPa}\cdot\text{s}$. La combinaison de C_2F_6 et SDS 1% wt/wt glycérol 50.0% wt/wt eau DI donne une répartition très monodisperse des bulles générées, permettant d'obtenir un CV de 3,08 % à la sortie du dispositif. L'effet de stabilisation du tensioactif, la nature insoluble du C_2F_6 , associé à une phase continue visqueuse qui empêche le rapprochement des bulles, permet de diminuer le contact entre les bulles et de minimiser le vieillissement de la mousse. Cette combinaison de paramètres semble donc permettre une production de mousses monodisperses et stables.

TABLE 2.3 – Diamètre moyen des bulles et CV pour un mélange SDS 1% wt/wt glycérol 50.0% wt/wt eau DI.

C_2F_6	1.0 wt % SDS		SDS 1% wt/wt glycérol 50.0% wt/wt eau DI	
	Diamètre moyen (μm)	CV (%)	Diamètre moyen (μm)	CV (%)
Canal de production	20.57	1.20	34.28	1.12
Canal de collecte	18.87	3.0	35.69	2.84
Sortie du dispositif	19.70	17.5	34.84	3.08

2.6 Modèle semi-empirique de production

2.6.1 Principe de fabrication d'une bulle

Dans la section 2.4.3 nous avons observé un phénomène contre intuitif dans l'évolution du diamètre des bulles en fonction de la pression. La tendance qui s'est dégagée dans ces mesures a montré que le diamètre augmente à mesure que la pression s'élève jusqu'à un certain seuil. Au delà de cette pression critique, le diamètre des bulles décroît, laissant apparaître une tendance non linéaire de l'évolution du diamètre en fonction de la pression. Dans cette section, nous allons définir un modèle mathématique permettant de prédire cette évolution non linéaire, en commençant par analyser quantitativement ce phénomène.

En effet, pour pouvoir comprendre la dynamique de création d'une bulle, nous avons observé ce procédé à l'aide de la caméra rapide. En s'assurant une fenêtre d'observation suffisamment étroite pour atteindre la vitesse d'acquisition de 20 000 *fps*, nous sommes alors en mesure de pouvoir observer la dynamique de ce phénomène illustré en figure 2.11.

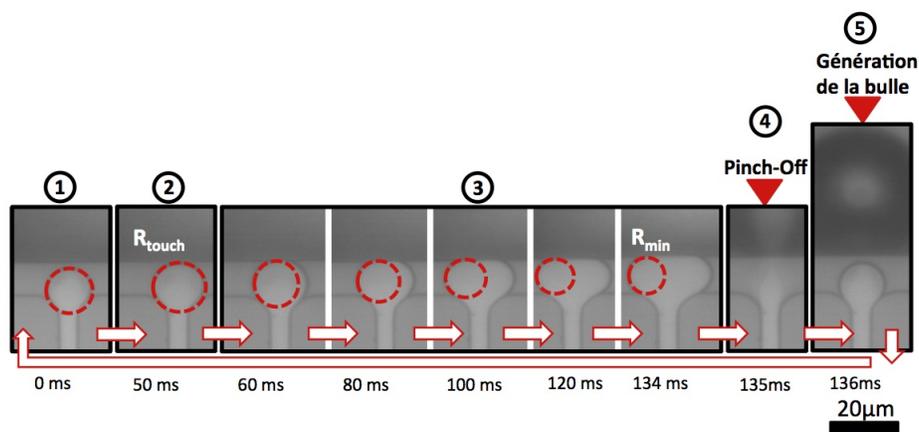


FIGURE 2.11 – Cycle de production d'une bulle (avec une profondeur de gravure des canaux de $2.5\mu\text{m}$, une solution avec 60% de glycérol, une pression de N_2 de 0.5bar et un débit de la phase continue de $50\mu\text{L}/\text{min}$).

Le procédé de fabrication d'une bulle décrit figure 2.11 montre plusieurs phases :

① : Initialement, la crête $2D$ arrive sur la terrasse (images allant de 0 à 50ms) et le rayon R de la bulle continue de croître.

② : A $t=50\text{ms}$, la ligne de contact atteint le bord de la terrasse et se retrouve pincée, on notera à ce

moment le rayon $R = R_{touch}$.

③ : Jusqu'à $t=134ms$ la crêpe s'étale latéralement le long de la terrasse. Pendant cet étalement, le rayon de courbure de la bulle (indiqué par les cercles en pointillés) diminue jusqu'à atteindre son minimum R_{min} .

④ : A $t=135ms$, la bulle est totalement pincée et le phénomène de *pinch-off* se produit, avec un temps de pincement très rapide (moins de $50\mu s$ pour une solution à 0% de glycérol, et jusqu'à $200\mu s$ pour une solution à 60% de glycérol).

⑤ : Finalement, la crêpe se rétracte (image à $t=136ms$) et le procédé se répète de façon périodique.

Nous avons dans un premier temps cherché à observer l'impact de la viscosité sur les variations du rayon de courbure de la crêpe. On constate sur la figure 2.12a que le rayon minimum R_{min} précédant chaque pincement est indépendant de la concentration de glycérol de la phase continue et donc de la viscosité. Sur la figure 2.12b, le temps a été normalisé par rapport à la fréquence de production pour chacune des trois viscosités. Le chevauchement des courbes indique que le ralentissement de la production est bien causé par la viscosité du mélange, et que la phénoménologie reste la même.

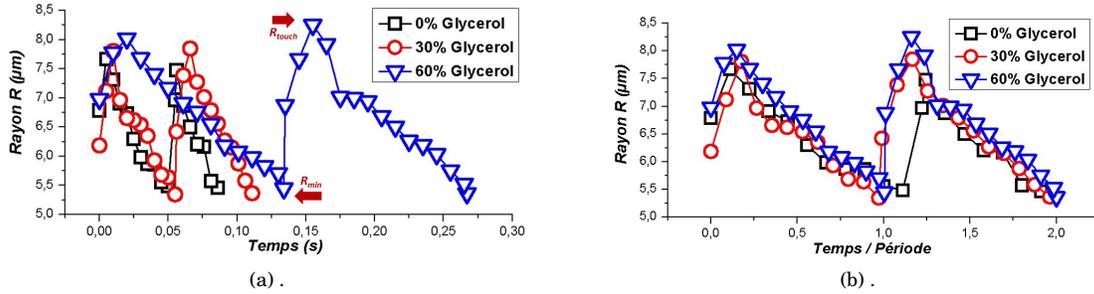


FIGURE 2.12 – Evolution du rayon de courbure lors de la fabrication d'une bulle au cours du temps. **a.** : Variation du rayon de courbure en fonction du temps. **b.** : Variation du rayon de courbure en fonction du temps normalisé par rapport à la période de production.

Ensuite, et afin d'expliquer le phénomène d'étalement de la crêpe sur la terrasse, il est impératif de comprendre ce qui se passe au niveau de la ligne de contact du pincement de la crêpe au bord de la terrasse. Comme indiqué sur la figure 2.13a, avant d'atteindre le bord de la terrasse (phase ① de la figure 2.11), le ménisque eau/Gaz avance relativement doucement (pointillés sur la figure 2.13a), les angles de contact d'avancement θ_v et θ_s définissent respectivement le contact avec le verre et le silicium (considéré égaux pendant cette phase de progression de la bulle), et r le rayon de courbure du ménisque dans cette coupe transversale. On peut alors écrire dans le cas où $\theta_s = \theta_v$:

$$\begin{aligned}
 (h/2) &= r \cdot \cos\theta_v \\
 (h/2) &= r \cdot \cos\theta_s \\
 \Rightarrow h &= r \cdot (\cos\theta_v + \cos\theta_s) \\
 \Leftrightarrow r &= \left(\frac{h}{\cos\theta_v + \cos\theta_s} \right) \tag{2.1}
 \end{aligned}$$

Une fois le ménisque arrivé au bord de la terrasse, la crêpe commence à s'étaler (étapes ②-③ de la figure 2.11). L'angle de contact θ_v au niveau de la frontière gaz/verre reste le même pendant que la

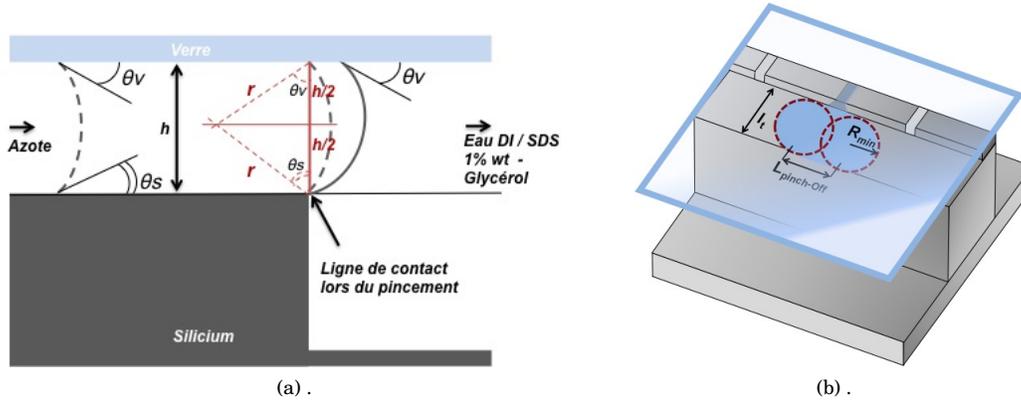


FIGURE 2.13 – Analyse géométrique des phases ①-②-③ de la figure 2.11. **a.** : Schéma de principe du phénomène de pinch-off avec l'avancée du ménisque eau /gaz jusqu'au bord de la terrasse (vue en coupe du générateur). **b.** : Représentation schématique de l'étalement de la crêpe une fois arrivée au bord de la terrasse (au contact de la ligne de pinch-off).

crêpe s'étale le long de la terrasse tandis que l'angle θ_s va diminuer. En effet, une fois que la crêpe se sera étalée au maximum, le ménisque va commencer à déborder vers le canal de collecte, l'angle θ_v reste inchangé et l'angle θ_s qui va tendre vers 0 (ligne continue sur la figure 2.13a).

A l'instant où la crêpe est au contact du bord de la terrasse, la pression de Laplace est égale à $\sigma/(r+R_{touch})$ (σ étant la tension de surface, r le rayon du ménisque en coupe transversale et R_{touch} le rayon lorsque le ménisque atteint le bord de la terrasse (étape ②)). En remplaçant de terme correspondant à r (équation 2.1), on peut alors écrire que $P_{Laplace} = \sigma \cdot (\cos\theta_v + \cos\theta_s)/h$. Un instant avant la formation de la bulle, la pression de Laplace est alors maximale à l'intérieure de la crêpe, le ménisque est sur le point de déborder dans le canal de production (R_{touch} a diminué jusqu'à R_{min}) et θ_s devient nul. En réécrivant l'équation de la pression, nous obtenons finalement une pression maximum définie par $P_{Laplace-max} = \sigma \cdot (\cos\theta_v + 1)/h$. A cet instant, $P_{Laplace} = P_{Laplace-max}$ et le rayon R_{min} est alors défini par $R_{min} = h/(1 - \cos\theta_s)$.

La phase ③ illustrée en figure 2.13b permet d'observer la crêpe totalement étalée sur la terrasse avant le phénomène de *pinch-off*. On notera la longueur $L_{pinch-off}$ la distance qui sépare les deux centres respectifs des cercles de rayon R_{min} et l_t la largeur de la terrasse. Si la pression à l'intérieur de la crêpe reste inférieure à la pression maximale $P_{Laplace-max}$, aucune bulle ne se produira. A l'inverse, si la pression maximale est dépassée, plusieurs scénarios sont possibles :

- Si la largeur de la terrasse l_t est suffisamment petite, de manière à ce que la pression de Laplace à l'instant où la crêpe touche le bord de la terrasse soit plus grande que $P_{Laplace-max}$ (soit $R_{touch} < h/(1 - \cos\theta_s)$), alors la bulle se crée instantanément au contact du bord de la terrasse. Dans ce cas la géométrie du dispositif se rapproche fortement de celle de la *T-Junction*, et ce, avec des paramètres de production influant sur la taille des bulles [32].

- Si d'un autre côté l_t est trop grande ($l_t > 2h/(1 - \cos\theta_s)$), la géométrie ne permet pas à R d'atteindre R_{min} . Dans ce cas, la crêpe envahira toute la terrasse et les bulles seront créées de façon chaotique ce qui affectera qualité de la production (phénomène illustré en figure 2.17 et obtenu avec un générateur à géométrie variable, détaillé en section 2.6.2).

Au cours des expériences, nous avons également pu observer que $L_{pinch-off}$ est un paramètre dominant dans la taille des bulles générées. En effet, on peut observer en figure 2.14 que plus la pression

appliquée est élevée, plus $L_{pinch-off}$ diminue, ce qui a des conséquences directes sur les performances du dispositif et sur la taille des bulles.

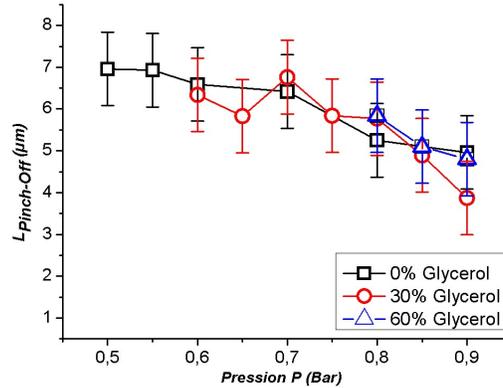


FIGURE 2.14 – Longueur du ménisque précédant le pincement ($L_{pinch-off}$) en fonction de la pression P pour les 3 concentrations de glycérol.

Afin de mieux comprendre la phénoménologie de création de bulles, nous avons fabriqué un troisième dispositif dont la particularité est d'avoir une géométrie variable. A ce titre nous le nommons dispositif "Variable". Celui-ci nous permet d'approfondir la compréhension des phénomènes et des paramètres géométriques influents sur la génération de bulles.

2.6.2 Influence de la géométrie lors de la création d'une bulle

La particularité de ce générateur réside dans l'augmentation progressive de la longueur de la terrasse des sites de production. Par ailleurs trois motifs particuliers influençant la création d'une bulle/goutte ont été ajoutés. Dans le premier cas la jonction entre le canal de production et la terrasse est droite, tandis que pour le second motif, les bords de la jonction sont évasés. Enfin le troisième motif ne diffère pas du premier au niveau de la jonction mais au niveau du bord de la terrasse qui a été gravée sur toute la hauteur du canal de collecte avec un motif triangulaire (figure 2.15).

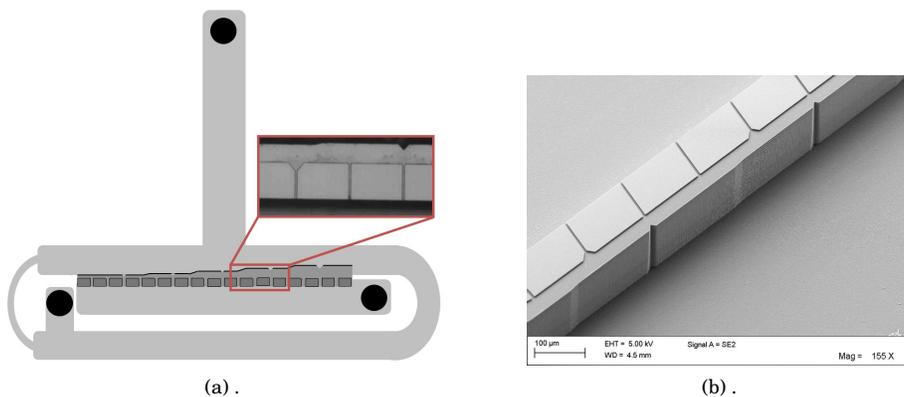


FIGURE 2.15 – **a.** : Schéma simplifié de la géométrie "Variable" avec photo de la terrasse avec les différents motifs de gravure. **b.** : Photographie de la terrasse variable réalisée au MEB.

Il est évident qu'avec une telle géométrie il ne sera pas possible d'obtenir une production en sortie de dispositif avec une bonne monodispersité. Cependant il sera possible d'étudier le comportement de l'étalement de la crêpe au moment de la création d'une bulle et ainsi pouvoir mesurer l'influence de la géométrie sur la production.

L'observation qui se présente en premier lieu concerne l'étalement de la crêpe avant la création de bulle. On peut constater sur l'ensemble des films réalisés à débit constant ($60\mu L/min$) et à pression variable (la gamme de pression allant de $0.4bar$ à $0.6bar$), que plus la largeur l_t de la terrasse augmente, plus la crêpe s'étale pour les canaux à jonction droite et évasée (figure 2.16).

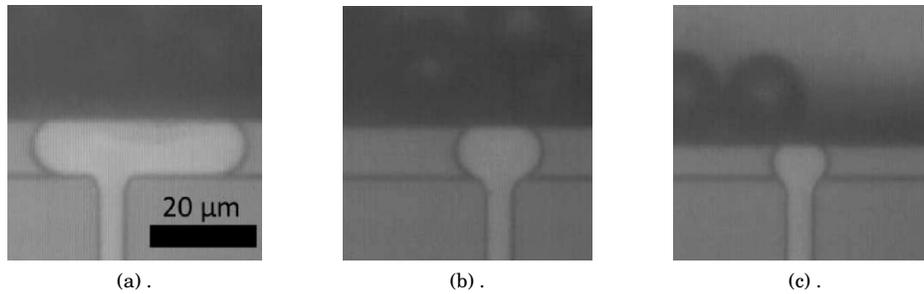


FIGURE 2.16 – Dépendance de la largeur de la terrasse lors de l'étalement de la crêpe. Phénomène observé sur la géométrie "Variable". **a.** : Largeur de terrasse $l_t=14\mu m$. **b.** : Largeur de terrasse $l_t=12\mu m$. **c.** : Largeur de terrasse $l_t=8\mu m$.

Dans le cas des canaux à jonction droite avec terrasse gravée en V , un phénomène intéressant est à relever. Lors de la croissance de la crêpe, celle-ci se retrouve directement "piégée" dans le creux de la terrasse et ne va donc pas pouvoir s'étaler. Nous n'étudierons pas de façon approfondie le comportement de la bulle dans cette géométrie particulière mais force est de constater qu'il serait possible de réduire les sites de production (au niveau de la longueur de la terrasse) ce qui permettrait d'augmenter le nombre de sites de production et ainsi, d'augmenter considérablement la production en sortie de dispositif. La figure 2.17 illustre parfaitement la remarque précédente. La largeur de la terrasse, aussi grande soit elle ($l_t=16.2\mu m$), n'influe en rien sur le site de production avec le motif en V , qui génère des bulles sans jamais s'étaler. Cependant, il en est autrement pour le site voisin, où la crêpe vient alors même jusqu'à déborder sur l'espace "réserve" au canal à jonction droite. On se retrouve dans le scénario évoqué précédemment où $l_t > 2h/(1 - \cos\theta_s)$ et où le rayon R atteint R_{min} une fois que la crêpe a totalement envahi les deux sites voisins (une fois la pression de Laplace maximale atteinte pour cette largeur de terrasse l_t).

Ce dispositif "Variable" a donc permis de mettre en avant le fait que la géométrie contrôle majoritairement la production de bulles. D'une part lorsque la largeur de la terrasse l_t augmente, la phase dispersée s'étale davantage et la taille des bulles s'en trouve affectée (augmentation significative du diamètre). D'autre part lorsque la longueur de la terrasse augmente, la crêpe va se répandre sur les sites de génération voisins et la production devient plus chaotique et beaucoup moins contrôlée. Cependant, nous avons pu observer que le motif gravé sur la hauteur du canal de collecte était très bénéfique pour empêcher un étalement trop prononcé du gaz. Dans ce cas, la largeur de la terrasse devient le seul paramètre pouvant influencer sur le diamètre de la crêpe avant son passage sous forme de bulle.

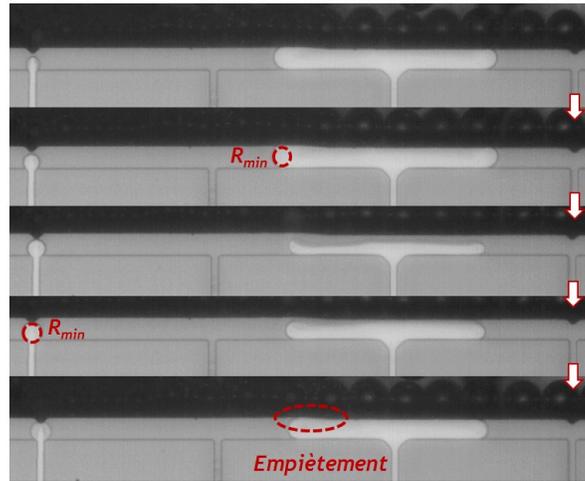


FIGURE 2.17 – Comparaison du cycle de création de bulle selon les sites de production. La phase continue est un mélange SDS 1% wt/wt eau DI - glycérol 50% wt/wt envoyée à $60\mu\text{L}/\text{min}$. La phase dispersée est du N_2 envoyé à une pression de 0.42bar .

2.6.3 Modèle semi-empirique de génération d'une bulle

A présent, nous allons définir un modèle dans lequel nous tiendrons compte de l'impact de tous les paramètres ayant une influence sur la génération d'une bulle. Au cours de ces expériences la phase dispersée utilisée est du N_2 envoyé à différentes pressions, et la phase continue est un mélange 1% wt/wt SDS eau DI avec du glycérol à différentes concentrations, injectée à $300\mu\text{L}/\text{min}$.

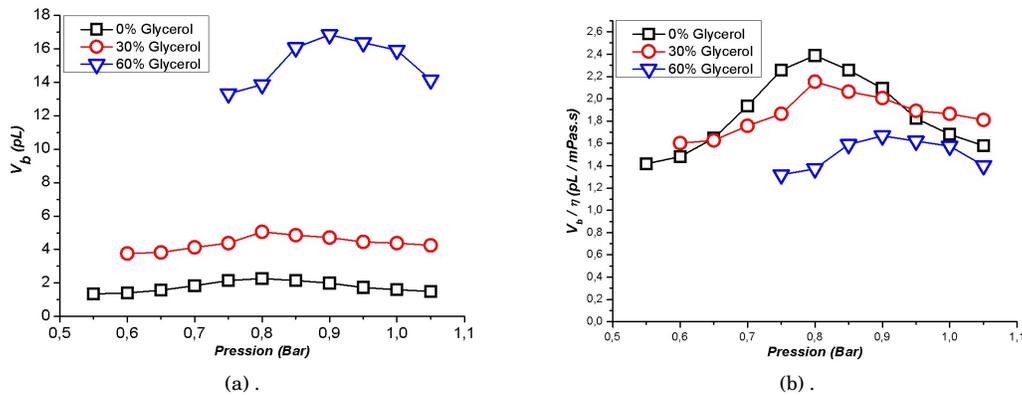


FIGURE 2.18 – Evolution du volume des bulles en fonction de la pression, données recueillies sur le dispositif avec le réseau de microcanaux gravés à $2\mu\text{m}$. **a.** : Mesures expérimentales du volume des bulles en fonction de la pression pour trois concentrations de glycérol. **b.** : Volumes des bulles normalisés par rapport à la viscosité de chacune des solutions en fonction de la pression.

La figure 2.18a montre les mesures de volume de bulles pour les trois solutions en fonction de la pression du gaz avec un débit de la phase continue fixé à $300\mu\text{L}/\text{min}$. La mesure de chacun des diamètres des bulles est limitée par la résolution de chaque image. Afin de réduire ces erreurs de mesure une centaine d'images prise dans des conditions identiques. Le CV a été évalué en sortie de production comme étant inférieur à 1%.

En ce qui concerne la dépendance des paramètres, le volume de la bulle n'augmente pas de manière uniforme avec la pression du gaz, mais affiche une valeur maximale à une pression $P \approx 0.8 \text{ bar}$. Sur la figure 2.18b, les volumes de bulles sont normalisés avec la viscosité de chaque solution et la tendance confirme l'hypothèse dans laquelle la majeure partie du gaz pénètre dans la bulle pendant le temps de pincement contrôlé par la viscosité.

Le volume de la bulle sera lui aussi dépendant du temps de *pinch-off*, lequel définit principalement le temps pendant lequel le gaz va être injecté dans la bulle pour lui donner en grande partie son volume final. Parmi la quantité de gaz présente dans le volume final d'une bulle, se trouve la quantité de gaz déjà présente au moment de la formation de la crêpe (mais qui demeure relativement insignifiante par rapport au volume de gaz injecté au moment du pincement).

Les travaux de Prud'Homme et al. [76] ont permis de définir un modèle mathématique du profil de vitesse d'un gaz compressible soumis à une différence de pression (formule corrigée des gaz compressibles de Hagen-Poiseuille). Le débit massique w a été obtenu en intégrant le profil de vitesse dans une géométrie cylindrique $w = \pi(P_g - P_b(t)r^4\rho)/(8\mu L) \cdot (1 - 1/2\epsilon)$ (limité au premier ordre du modèle). En transformant le débit massique en débit volumique $\phi_g(t)$, ce dernier s'exprime alors par :

$$\begin{aligned}\phi_g(t) &= \frac{(P_g - P_b(t))\pi r^4}{8\eta L} - \left(\frac{1}{2} \cdot \frac{(P_g - P_b(t))\pi r^4}{8\eta L} \cdot \frac{(P_g - P_b(t))}{P_g} \right) \\ \phi_g(t) &= \frac{dV_b(t)}{dt} = \frac{(P_g - P_b(t))(P_g + P_b(t))}{2P_b(t)R_h}\end{aligned}\quad (2.2)$$

avec $R_h = 8\eta L/\pi r^4$ la résistance hydrodynamique du canal de gaz connecté à la bulle (η est la viscosité du fluide et L la longueur du capillaire cylindrique), $P_g = P_0 + P$ la pression absolue du gaz (avec P_0 la pression atmosphérique (1 bar) et P la pression envoyée) et $P_b(t) = P_0 + 2\sigma/(3V_b(t)/4\pi)^{1/3}$ la pression à l'intérieur de la bulle sphérique en création (incluant la pression de Laplace, avec σ la tension de surface mesurée pour les 3 solutions avec le glycérol à 35 mN/m). La perte de charge causée par l'écoulement dans le canal de collecte est moindre de plusieurs ordres de grandeur et sera donc négligée par la suite. En simplifiant la relation 2.2, on obtient alors l'équation du volume de la bulle formée pendant un temps allant de $t = 0$ à $t = t_{\text{pinch-off}}$:

$$dV_{\text{Modèle}} = dt \frac{P(t)(P(t) + 2P_0)}{2P_0R_h}\quad (2.3)$$

Le temps $t_{\text{pinch-off}}$, est proportionnel à $L_{\text{pinch-off}}$ et est estimé au premier ordre [77] par :

$$t_{\text{pinch-off}} = \left(\frac{\alpha \cdot L_{\text{pinch-off}} \cdot \eta}{\sigma} \right)\quad (2.4)$$

où α est un facteur de proportionnalité sans dimension estimé à environ 60, η la viscosité de la solution.

La figure 2.19a montre la comparaison entre les données du modèle phénoménologique décrit ci-dessus et les données expérimentales ($V_{\text{Modèle}}$ ayant été obtenues par intégration de l'équation 2.3 de $t=0$ à $t_{\text{pinch-off}}$).

La figure 2.19b fournit une comparaison détaillée du modèle et des données expérimentales, pour les concentrations de 0 et 30% de glycérol. On constate un bon accord, et en particulier, une bonne prédiction du volume de la bulle avec les données expérimentales. L'explication de ce comportement provient du fait que, même si P augmente, $L_{\text{pinch-off}}$ diminue (figure 2.14) et par corollaire

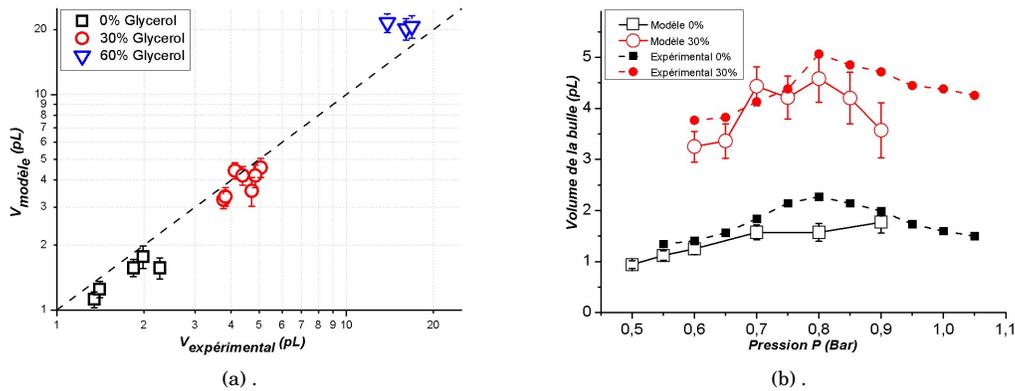


FIGURE 2.19 – Evolution du volume des bulles (dédit par le modèle et mesuré expérimentalement) à différentes concentration de glycérol. **a.** : Mesures expérimentales du volume des bulles en fonction de la pression pour les 3 solutions. **b.** : Volumes des bulles obtenus à partir du modèle mathématique en fonction du volume mesuré expérimentalement.

$t_{\text{pinch-off}}$ d'après l'équation 2.4. Ce modèle simple ne tient pas compte d'un certain nombre d'éléments tels que les effets des détails spécifiques de la géométrie, de l'angle de contact dynamique lors de l'étalement de la crêpe, ni de la tension de surface dynamique pendant le pincement.

2.7 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté l'ensemble des travaux réalisés en terme de conception, réalisation et de caractérisation d'un nouveau microgénérateur de mousse et d'émulsion. Basé sur la méthode de production MCE proposée par Sugiura et al. [17], ce dispositif se distingue des autres générateurs présentés dans la littérature par la géométrie novatrice de son canal d'évacuation. Deux formes ont été réalisées puis comparées, la première adoptant une géométrie droite (figure 2.1a) et l'autre une géométrie fractale (figure 2.1b).

Les performances atteintes avec ce dispositif se situent à l'état de l'art en assurant une fréquence de production pouvant atteindre jusqu'à 4kHz par site de production (soit avec un total de 256 canaux, une fréquence de production théorique en sortie du dispositif de l'ordre du MHz). Le coefficient de variation est meilleur en sortie du dispositif "Fractal" grâce à sa géométrie qui permet une meilleure évacuation et moins de contact entre les bulles/gouttes. Dans le cas de la génération de mousse, le CV obtenu est de l'ordre de 1% en sortie de production et de 3% en sortie de dispositif. Ces résultats ont été obtenus après avoir modifié le protocole expérimental en changeant la nature du gaz, en augmentant la concentration de surfactant et la viscosité de la phase continue. Dans le cas des émulsions, la production d'émulsion stable est plus aisée car il y a moins de phénomènes de vieillissement. Là encore les meilleurs résultats en terme monodispersité apparaissent pour la géométrie "Fractal" où l'on mesure un CV de l'ordre de 1% au niveau du canal de production et de 3% à la sortie du dispositif.

Au vu de ces performances cela en fait un générateur idéal pour des applications liées à la biologie (l'encapsulation de cellules ou organites subcellulaires, les réactions enzymatiques, des bancs de tests pour cellules, ou encore le séquençage d'ADN), la diffusion de médicaments à haut débit (microréacteurs de gouttes individuelles), agents de contraste pour l'imagerie ultrasonique, et la synthèse chimique (mesures de chimie cinétique, la cristallisation de protéines, la synthèse de nanoparticules).

Nous avons par la suite développé un troisième microgénérateur dont la géométrie variable des sites de production a permis de dégager les paramètres prépondérants lors de la création de bulles ou de gouttes. Cette courte étude a ensuite débouché sur le développement d'un modèle mathématique semi-empirique décrivant la génération d'une bulle à partir de l'intégration du profil de vitesse d'un gaz compressible et des paramètres dimensionnels et temporels liés au phénomène de *pinch-off*. Les résultats expérimentaux et le modèle mathématique sont en bonne adéquation au niveau de la prédiction du volume de la bulle en fonction de la pression.

MICRORHÉOMÈTRE MEMS

Sommaire

3.1	Développement du microrhéomètre	70
3.1.1	Présentation du dispositif	70
3.1.2	Performances théoriques du système	72
3.1.3	Réalisation du microrhéomètre	74
3.2	Méthode de caractérisation	76
3.2.1	Electronique de conditionnement	76
3.2.2	Mesure de température - Capteur piezorésistif intégré	77
3.2.3	Méthode de pré-remplissage	80
3.2.4	Coefficient de calibration	82
3.2.5	Temps de réponse du système	87
3.2.6	Protocole analytique - détermination des courbes d'écoulement	90
3.3	Mesures à débits contrôlés	92
3.3.1	Mesures avec des fluides newtoniens	92
3.3.2	Mesures avec des fluides non-newtoniens	96
3.4	Mesures à pression contrôlée	100
3.4.1	Modification du protocole expérimental	100
3.4.2	Modèle mathématique d'approximation des courbes expérimentales.	102
3.4.3	Mesures avec des fluides newtoniens	104
3.4.4	Mesures avec des fluides non-newtoniens	105
3.5	Conclusion	107

3.1 Développement du microrhéomètre

3.1.1 Présentation du dispositif

Ce dispositif représente la seconde thématique majeure de cette thèse qui correspond à la conception du dispositif permettant la caractérisation *in-situ* de fluides complexes. Inspiré des travaux de Angelescu et al. [19],[62], ce capteur propose une méthode basée sur la mesure des contraintes (pertes de charge) subies par un fluide lors de son passage dans un canal microfluidique. Le principe est le suivant : lorsqu'un fluide est forcé à travers un canal à un débit imposé, il se crée un gradient de pression le long du canal, qui dépend de la rhéologie du fluide et des détails géométriques du canal. Ce gradient de pression peut être mesuré par la perte de charge entre deux points de mesure sur le canal en utilisant un capteur de pression différentielle. Des expériences répétées à différents débits permettent, après un traitement adéquat des données, de remonter à la rhéologie d'un fluide non-newtonien sur une gamme donnée de taux de cisaillement.

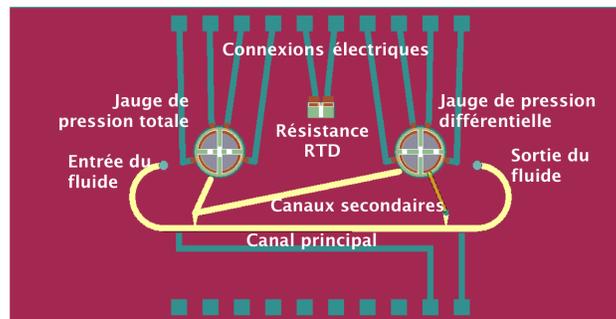


FIGURE 3.1 – Schéma intégral de la puce avec le microrhéomètre.

La figure 3.1 présente le dispositif dans son intégralité avec les différents éléments qui le constituent à savoir les deux jauges de pression (totale et différentielle), l'entrée et la sortie, le canal principal, les canaux secondaires situés de part et d'autre de chacune des jauges, ainsi que les connexions électriques et la résistance *RTD*.

Le rôle du canal principal est de faire circuler le fluide de l'entrée vers la sortie du dispositif. Grefés à ses deux extrémités, les canaux secondaires ont pour objectif de transmettre la pression au côté supérieur de la jauge de pression totale (l'autre côté étant soumis au vide) et en même temps des deux côtés de la jauge différentielle. Chacune des deux jauges est constituée d'un transducteur MEMS basé sur un pont de Wheatstone de piezorésistances.

La jauge de pression totale, également appelée jauge absolue, permet d'effectuer des mesures de pression relatives au vide absolu. La partie supérieure de la jauge connectée à l'entrée du fluide est constituée d'un pont de piezorésistances et la partie inférieure est quant à elle sous vide. Connectée à un canal secondaire provenant de l'entrée du dispositif, celui-ci va donc transmettre la pression à la jauge qui sera mesurée par le transducteur et dont les valeurs seront relatives au vide de la partie inférieure. Cette jauge sera utilisée dans le cas de mesures utilisant des mousses par exemple où la connaissance de la pression absolue est nécessaire pour étudier la rhéologie du fluide.

La jauge de pression différentielle se différencie de la jauge totale par sa partie inférieure qui est remplie de liquide et est connectée à la sortie du canal principal. La face supérieure est quant à elle connectée à l'entrée du canal principal. Ainsi, reliée aux canaux secondaires en entrée et en sortie du dispositif, la jauge va mesurer la perte de charge à travers le canal principal correspondant aux contraintes de cisaillement du fluide.

Dans les deux cas (jauge de pression différentielle et totale), le fluide de pré-remplissage (étape détaillée en section 3.2.3) est confiné dans les canaux secondaires et au dessus de chacune des jauges. Lorsque le fluide à tester est envoyé à travers le canal principal, il va déplacer le fluide de pré-remplissage faisant ainsi pression sur la jauge.

L'ajout d'une résistance RTD sur la puce permet de mesurer les variations de température. Elle a été conçue avec les mêmes étapes de fabrications que les deux jauges de façon à pouvoir observer les éventuelles variations des valeurs des piezorésistances du pont lors d'un changement de la température au cours d'une expérience. Une étude plus approfondie sera présentée en section 3.2.2.

L'ensemble de ces éléments sont connectés à des pistes électriques lesquelles seront utilisées pour connecter les différents appareils tels qu'une source de tension continue, un étage de filtrage ou encore une carte d'acquisition (section 3.2.1).

Un total de trois géométries du canal principal a été réalisé avec une géométrie à canal droit et deux géométries présentant des contractions sinusoïdales (figure 3.2).

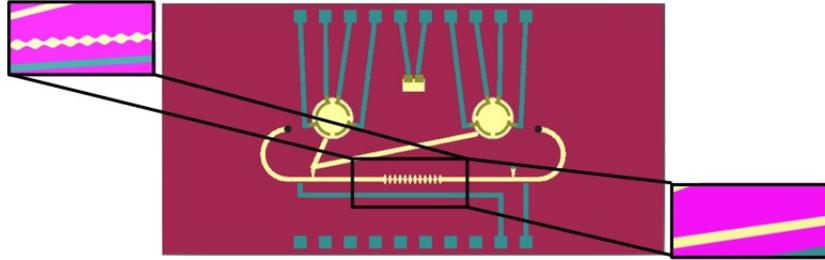


FIGURE 3.2 – Modèle des 3 géométries du canal principal. Image gauche : canal sinusoïdal avec une amplitude de $50\mu\text{m}$ et une longueur de périodicité λ de $500\mu\text{m}$. Image centrale : canal droit-sinusoïdal-droit avec des sinusoïdes d'amplitude de $90\mu\text{m}$ et une longueur λ de $200\mu\text{m}$. Image droite : canal droit.

Ces deux canaux principaux à constrictions sinusoïdales ont été conçues pour pouvoir observer le comportement de particules/vésicules présentes dans le fluide. Des paramètres propres à chaque entité tels que la fréquence d'oscillation lors du passage dans les constrictions des canaux influencent la réponse de la membrane et permettent alors de détecter, en fonction de cette réponse, la nature des vésicules présentes dans le fluide. L'ensemble des résultats présentés dans cette thèse ont été obtenus uniquement à partir du canal principal droit.

Ce microcapteur intègre donc plusieurs éléments de mesures fluidiques qui en font un outil versatile. De plus, grâce à ses dimensions très réduites, ce microrhéomètre présente de nombreux avantages par rapport aux rhéomètres classiques à partie mobile.

- *La quantité de liquide requise.* La taille réduite des microcanaux ne requièrent qu'un très faible volume du liquide à étudier pour chaque cycle de mesure (quelques mL).

- *La mesure à forts taux de cisaillement.* La géométrie rectangulaire des canaux (à épaisseur faible et contrôlée) avec le ratio d'aspect $h > w$ permet de réaliser des cycles de mesures à forts taux de cisaillement supérieurs à $7.10^4 s^{-1}$.

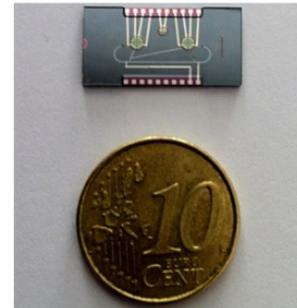


FIGURE 3.3 – Photographie du microrhéomètre ($2\text{cm} \times 1\text{cm} \times 1\text{mm}$).

- *L'absence de volumes morts.* La dimension réduite des microcanaux et l'intégration des jauges sur puce permet de limiter les volumes morts et ainsi d'augmenter la précision des mesures dans un intervalle de temps minime.

- *Le packaging.* L'intégration sur puce des différents éléments de ce capteur lui donnent une taille considérablement réduite en comparaison avec des rhéomètres classiques (figure 3.3). Un *packaging* avec une électronique de mesure annexe peut alors également atteindre une taille très restreinte.

- *Le coût.* Encore une fois grâce à sa taille réduite peut devenir, lors d'une industrialisation, beaucoup moins onéreux que ses homologues classiques, dans la mesure où il est produit en plusieurs exemplaires grâce à la technologie de fabrication.

3.1.2 Performances théoriques du système

Après avoir présenté le dispositif et en avoir évalué les points positifs, nous allons à présent définir dans cette section la gamme de fonctionnement et les limites imposées par la géométrie et la technologie de ce capteur.

Les dimensions du dispositif à canal principal droit sont répertoriées dans le tableau 3.1 et illustrées sur la figure 3.5. On choisira dans l'application numérique de prendre le cas où le fluide utilisé se trouve être de l'eau (à température ambiante $\eta = 1 \text{ mPa} \cdot \text{s}$). Ces dimensions permettent alors d'ob-

TABLE 3.1 – Dimensions du microrhéomètre à canal principal droit.

Éléments	Dimensions (en m)
Longueur du Canal 1 (L_1)	$6.6 \cdot 10^{-3}$
Diamètre des jauges (R)	$2 \cdot 10^{-3}$
Longueur du Canal 2 (L_2)	$1.15 \cdot 10^{-3}$
Longueur du Canal principal (L_3)	$8 \cdot 10^{-3}$
Hauteur des canaux (h_1, h_2, h_3)	$75 \cdot 10^{-6}$
Largeur des canaux (w_1, w_2, w_3)	$200 \cdot 10^{-6}$
Épaisseur de la membrane (h)	$50 \cdot 10^{-6}$

tenir un temps de réponse du système de $470 \mu\text{s}$. A noter que cette valeur est purement théorique et qu'en pratique, ce sont les temps de réponse imposés par les éléments de caractérisation (effet résistif des tubes en PEEK (poly ether ether ketone) pour faire circuler le fluide, effet capacitif des seringues pour envoyer le fluide) qui vont définir le temps de réponse réel de l'ensemble du système. Dans un premier temps nous allons déterminer la gamme du nombre de Reynolds en fonction de la gamme de débits caractéristique imposée lors de nos expériences.

Le canal rectangulaire principal (figure 3.4) du microrhéomètre possède une hauteur h_3 de $75 \mu\text{m}$, une largeur w_3 de $200 \mu\text{m}$ et une longueur L_3 de 0.8 mm . La gamme des débits caractéristiques utilisée lors des expériences est d'environ $Q_{\min} = 1 \mu\text{L}/\text{min}$ jusqu'à $Q_{\max} = 1 \text{ mL}/\text{min}$. Le nombre de Reynolds (relation 1.6) est donc approximativement compris entre $0.12 < Re < 121.2$. La gamme de débit et la géométrie du dispositif permettent d'avoir un écoulement laminaire du fluide sur l'ensemble des expériences réalisées.

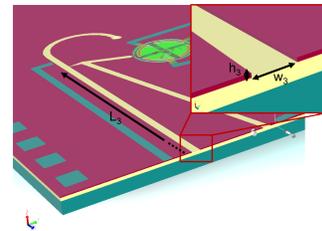


FIGURE 3.4 – Modèle 3D du rhéomètre (pas à l'échelle), avec w_3 la hauteur du canal principal, h_3 sa hauteur et L_3 sa longueur.

Au cours des premières mesures de caractérisation de ce capteur, nous avons tenté de dépasser cette valeur maximale en imposant un débit de $2 \text{ mL}/\text{min}$. Cela a eu pour conséquence de fendre la membrane et de fêler le verre d'étanchéité. Nous avons donc décidé de

conserver $1\text{mL}/\text{min}$ comme étant le débit maximal à imposer en entrée du dispositif. Ainsi la gammes de vitesses imposée au fluide lors de chaque expérience sera normalisée par rapport à la viscosité du fluide à tester afin de s'assurer que le capteur ne soit pas endommagé.

Par ailleurs, pour pouvoir observer les divers phénomènes intrinsèques aux fluides liés à la déformation de la membrane, il est important de déterminer le temps de réponse du système et de le comparer aux temps/fréquences d'acquisition des appareils de mesures utilisés. Les équations de la microfluidique, les notions de résistances et de capacités hydrodynamique dans une géométrie rectangulaires (chapitre 1) peuvent être utilisées pour permettre de définir le modèle mathématique du système (figure 3.5) et ainsi en déduire son temps de réponse.

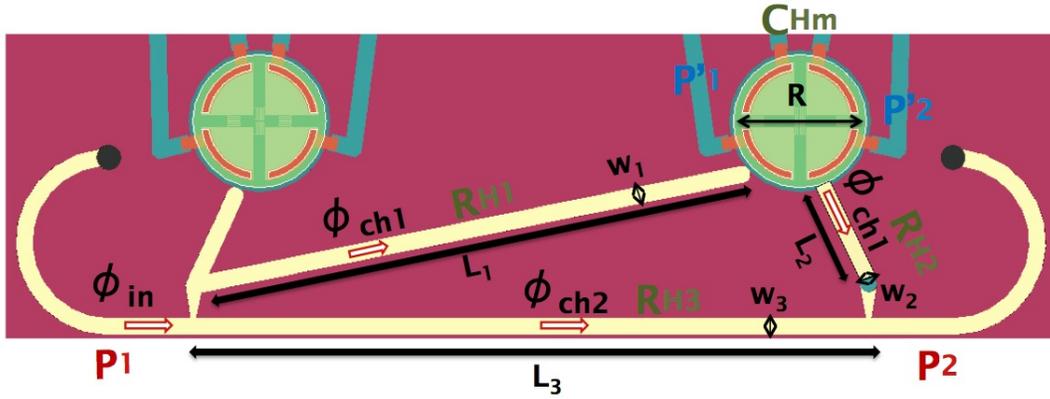


FIGURE 3.5 – Modèle microfluidique du rhéomètre, avec Φ_{in} le débit total étant la somme de ϕ_{ch1} (le débit dans les deux canaux secondaires) et ϕ_{ch2} le débit dans le canal principal, R_{H1} , R_{H2} et R_{H3} , respectivement les résistances hydrodynamiques des deux canaux secondaires et du canal principal, C_{Hm} la capacité hydrodynamique de la membrane, P_1 et P_2 respectivement les pressions d'entrée et de sortie du dispositif et enfin P'_1 et P'_2 les pressions respectives au dessus et au dessous de la membrane.

On rappelle que $\Delta P = R_H \cdot Q$ avec ΔP la différence pression le long du canal rectangulaire, R_H la résistance hydrodynamique du canal et Q le débit volumique ainsi que la relation $V = \Delta P \cdot C_H$ où V est dans ce cas le volume compris entre l'état de repos et l'état déformé de la membrane et C_H la capacité hydrodynamique. Partant du modèle schématique figure 3.5 il est possible d'écrire les équations qui lient, pression, débit et volume pour ce dispositif. Les équations s'écrivent alors :

$$P'_1 - P'_2 = \frac{V}{C_{Hm}} \quad (3.1)$$

$$P_1 - P'_1 = R_{H1} \cdot \Phi_{ch1} \quad (3.2)$$

$$P_2 - P'_2 = -R_{H2} \cdot \Phi_{ch1} \quad (3.2)$$

$$P_1 - P_2 = R_{H3} \cdot (\Phi_{in} - \Phi_{ch1})$$

$$\text{avec } \Phi_{ch1} = \frac{dV}{dt} \quad (3.3)$$

En soustrayant les équations 3.1 et 3.2 et en remplaçant le terme Φ_{ch1} par celui de l'équation 3.3,

on peut écrire :

$$\begin{aligned} (P_1 - P_2) - (P'_1 - P'_2) &= (R_{H1} + R_{H2}) \cdot \frac{dV}{dt} \\ R_{H3} \cdot \left(\Phi_{in} - \frac{dV}{dt} \right) - \frac{V}{C_{Hm}} &= (R_{H1} + R_{H2}) \cdot \frac{dV}{dt} \\ \frac{dV}{dt} \cdot (R_{H1} + R_{H2} + R_{H3}) &= R_{H3} \cdot \Phi_{in} - \frac{V}{C_{Hm}} \end{aligned} \quad (3.4)$$

En résolvant l'équation différentielle 3.4, l'équation du volume s'exprime de la façon suivante :

$$V = R_{H3} \cdot \Phi_{in} \cdot C_{Hm} + \exp\left(\frac{-t}{(R_{H1} + R_{H2} + R_{H3}) \cdot C_{Hm}}\right) \quad (3.5)$$

L'équation 3.5 permet alors de faire apparaître le temps de réponse du système (de la forme $\exp(-t/\tau)$, τ étant le temps de réponse) qui s'exprime par :

$$\tau = (R_{H1} + R_{H2} + R_{H3}) \cdot C_{Hm} \quad (3.6)$$

Les relations de résistance et de capacité hydrodynamiques définies respectivement par les relations 1.15 et 1.21) permettent de déterminer le temps de réponse du système à partir de l'équation 3.6 :

$$\begin{aligned} \tau &= (R_{H1} + R_{H2} + R_{H3}) \cdot C_{Hm} \\ &= \left(\frac{12\eta L_1}{w_1 h_1^3 \left(1 - 0.63 \frac{h_1}{w_1}\right)} + \frac{12\eta L_2}{w_2 h_2^3 \left(1 - 0.63 \frac{h_2}{w_2}\right)} + \frac{12\eta L_3}{w_3 h_3^3 \left(1 - 0.63 \frac{h_3}{w_3}\right)} \right) \cdot \frac{\pi R^6}{192D} \end{aligned} \quad (3.7)$$

avec L_1, L_2, L_3 les longueurs respectives des deux canaux secondaires et du canal principal, w_n, h_n respectivement la largeur et la hauteur des trois canaux et R le rayon de la membrane.

On rappelle que le terme D est la constante de rigidité et qu'elle se définit par la relation $D = \frac{Eh^3}{12(1-\nu^2)}$ (avec E le module de Young et ν le coefficient de Poisson et h l'épaisseur de la membrane). Dans le cas d'une structure mono cristalline du silicium orientée selon la direction $\langle 110 \rangle$, le module $E=170GPa$ et le coefficient $\nu=0.28$ [78].

3.1.3 Réalisation du microrhéomètre

Ce dispositif a été réalisé au sein du département SMM à l'ESIEE Paris dont les étapes de fabrication furent assurées par les ingénieurs de la salle blanche. Les masques ont été dessinés à partir du logiciel de CAD (Coventor Inc, USA).

Les dispositifs ont été conçus à partir d'une plaque de Silicium de 4", d'une épaisseur de 400 μm sur laquelle il a été effectué une étape d'oxydation (460nm), un dépôt de polysilicium (250nm) puis de nouveau une étape d'oxydation (apparition de 25nm de SiO_2). Le polysilicium a ensuite été dopé au bore par implantation ionique (ce qui permet d'accroître la conductivité du matériau).

Vient ensuite une première étape de photolithographie qui permet de faire apparaître la jauge de contrainte et les résistances du pont qui est suivie par une étape de gravure. La jauge à ensuite été protégée par une couche de nitrure (épaisseur 110 μm).

Après quoi le SiO_2 a été gravé de façon à créer des ouvertures pour le dépôt contrôlé de titane-platine (Ti/Pt) (par une étape de *lift-off*), constituant ainsi les connections électriques. Une étape de gravure du Si_3N_4 et du SiO_2 permet d'accéder au polysilicium de la jauge, laquelle sera comblée

par un nouveau dépôt de Ti/Pt reliant ainsi les pistes électriques au pont de résistances.

Le réseau de canaux est ensuite gravé sur la face avant en même temps que les trous d'accès aux fluides, lesquels seront ouverts pendant l'étape de gravure en face arrière. Au cours de cette dernière étape, le Si est également gravé au niveau de la jauge pour créer la membrane (on notera que cette étape permet d'obtenir différentes épaisseurs de la membrane en contrôlant le temps de gravure).

Pour rendre étanche le système, le dispositif a été soudé sur la face avant et la face arrière à l'aide de deux plaques de verre par soudure anodique. La plaque de verre en face avant a été gravée pour laisser apparaître les connections électriques, et celle de la face arrière a été gravée au niveau des trous d'accès pour pouvoir injecter le fluide. Les deux plaques ont également été gravées partiellement au niveau des jauges afin de créer un volume pour contenir le fluide.

Le dispositif mesure $2\text{cm} \times 1\text{cm}$, ce qui permet de fabriquer sur un même wafer un total de 20 puces.

A noter que la première génération de dispositifs a subi plusieurs dommages. En effet le support initial de fabrication était un wafer SOI (silicon on insulator, empilement de silicium-oxyde-silicium) (*Ultrasil*). Contrairement à une plaque de Si mono cristallin où l'épaisseur de la membrane est définie par le contrôle de la gravure en *DRIE*, la gravure sur une plaque SOI a l'avantage de s'arrêter au niveau de la couche d'oxyde imposant une épaisseur très bien contrôlée de la membrane.

Partant d'une plaque de SOI (membrane), les premières étapes ont été l'oxydation, le dépôt de polysilicium, le recuit, l'implantation de Bore et le dépôt de Nitrure. C'est empilement de couches a très certainement provoqué plusieurs contraintes. Les étapes de gravure (*DRIE*) ont ensuite été réalisées, ne laissant aucune trace visible de craquelures. Ce n'est que lors de l'étape de *lift off* que des craquelures sont apparues dans l'oxyde. Des tests électriques ont été réalisés et ont montré une conduction de surface court-circuitant les pistes électriques et rendant impossible l'utilisation de ce dispositif.

La faible épaisseur du silicium dans ce type de wafer et l'empilement de couches successives sont les causes de ces fissures. Par la suite, et afin de pallier à ce problème, les dispositifs ont été fabriqués uniquement à partir d'un wafer en silicium mono cristallin de 4" avec une épaisseur de $400\mu\text{m}$. Les secondes générations de microrhéomètres n'ont ensuite montré aucun signe de fissure ou d'altération des matériaux.

Le dispositif réalisé, il est positionné sur une carte PCB (printed circuit board) qui à été conçue pour servir à la fois de support et de lien vers la connectique du matériel fluide et électrique. Ce PCB est fixé à un support en acier qui a été spécialement usiné pour se positionner sur le microscope afin de pouvoir observer le dispositif au cours de chaque expérience (figure 3.7).

Un socle en aluminium dédié aux connexions microfluidiques a également été fabriqué. Il permet de connecter les capillaires d'entrée-sortie à la puce (figure 3.8) en assurant une étanchéité du système grâce à de petits joints situés entre le socle et la puce.

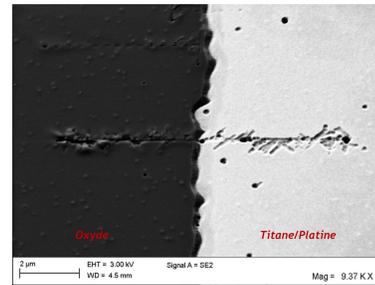


FIGURE 3.6 – Photographie du dispositif au niveau de la frontière entre l'oxyde et le dépôt de titane/platine.

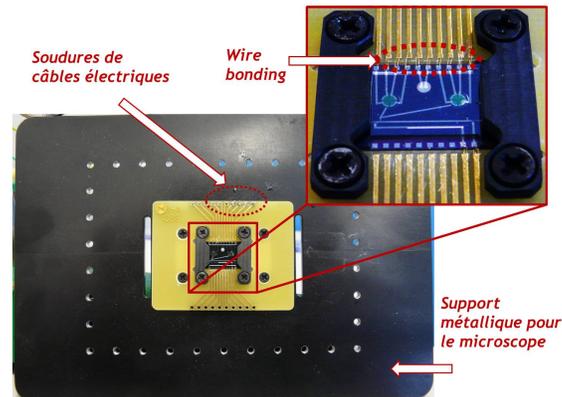


FIGURE 3.7 – Carte PCB fixée au support dédié au microscope (Vue de dessous).

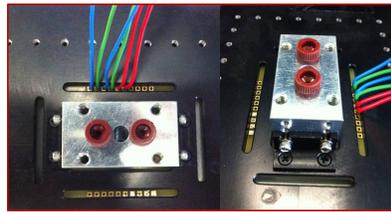


FIGURE 3.8 – Socle en aluminium dédié à la connectique microfluidique (vue de dessus).

3.2 Méthode de caractérisation

3.2.1 Electronique de conditionnement

Avec ce dispositif, la rhéologie des fluides ne peut être étudiée que par le biais de mesures électriques, ce qui nécessite une électronique de conditionnement pour pouvoir traiter le signal issu du capteur.

Le schéma de la figure 3.9 représente l'électronique de conditionnement utilisée pour pouvoir amplifier, filtrer et analyser les données issues du capteur. L'étage d'amplification est assuré par un amplificateur d'instrumentation de type *AD620* (Analog Device). En plus d'avoir un faible bruit en sortie d'amplification, il permet d'amplifier une mesure de tension différentielle, et convient pour la tension en sortie du pont de Wheatstone. Cet amplificateur peut fonctionner dans une gamme de tension allant de $-18V$ à $+18V$, on choisira de l'alimenter de $-5V$ à $+5V$ qui correspond à une gamme standard sur les générateurs de tension.

Le pont de piezorésistances (noté ABCD sur la figure 3.9) est supposé équilibré avec les quatre valeurs de résistances égales. En théorie $R_1 - R_3 - R_2 - R_4 = 0$ et la tension en sortie du pont aux bornes $B - D$ est nulle lorsque la membrane est au repos (non déformée), or on mesure une tension différentielle de l'ordre de $0.08V$. Les résistances du pont ont été dimensionnées pour avoir la même valeur mais, les épaisseurs de couches déposées et la résistance à la gravure de la résine pendant le transfert photolithographique ou encore les variations géométriques provenant du masque sont des paramètres qui peuvent légèrement varier et entraîner une différence dans les valeurs de résistances. Cela implique un déséquilibre du pont et de ce fait, l'apparition d'une tension non nulle. En connectant une résistance R_g de $12k\Omega$ (résistance de gain de l'amplificateur), le gain en sortie est de 5.11 et rehausse la tension de sortie à environ $0.45V$.

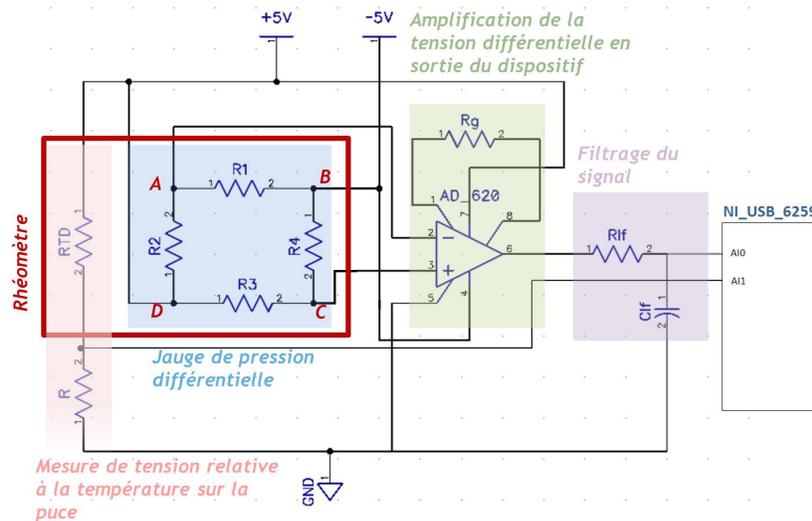


FIGURE 3.9 – *Electronique de conditionnement : mesure de température avec la résistance RTD, connexion du capteur de pression à l'alimentation et à l'amplificateur AD620 (Analog Device), étage de filtrage en sortie de l'AD620, traitement des données via la carte d'acquisition NI USB 6259 (National Instrument).*

La gamme de tension en sortie de l'amplificateur restant relativement bruitée (en grande partie par le 50 Hz ambiant), un étage de filtrage est positionné en sortie de l'étage d'amplification, l'objectif étant d'une part de réduire le bruit et d'accroître la précision des valeurs mesurées. Il est donc important de choisir des valeurs de composants qui permettent de descendre à une fréquence de coupure inférieure à 50 Hz tout en restant inférieure à la fréquence d'acquisition des données (environ 5 Hz) de façon à pouvoir visualiser l'ensemble du signal en sortie du filtre. On choisira une résistance $R_{lf}=820k\Omega$ et un condensateur $C_{lf}=100nF$ parmi la gamme de valeurs normalisées. Le temps de réponse du filtre est alors de 82 ms soit une fréquence de coupure d'environ 2 Hz. La figure 3.10 illustre la précision accrue due à l'étage de filtrage des valeurs mesurées en sortie de l'AD620.

Enfin, une carte d'acquisition (National Instrument) sera utilisée pour récupérer et traiter le signal en sortie de l'étage de filtrage, ainsi que la tension relative à la température. L'ensemble de ces informations sera géré à partir du logiciel *LabWindows (National Instrument)* où les données seront affichées sur l'interface graphique illustrée en figure 3.11).

3.2.2 Mesure de température - Capteur piezorésistif intégré

La piezorésistance de polysilicium (R_{RTD}) présente sur le dispositif est conçue selon la même procédure de réalisation que le capteur de pression avec cependant des dimensions différentes lui conférant une valeur nominale de l'ordre de 30 kΩ. Elle est utilisée afin de mesurer les variations de la valeur des piezorésistances du pont en fonction de la température. Elle sert également à déterminer le coefficient de température de résistance du capteur et par corollaire, les variations de température lors de chaque mesure. Elle délivrera donc une mesure de la température du fluide à tout instant, permettant ainsi d'observer un changement dans le comportement du fluide lors d'éventuelles variations de la température extérieure.

La mesure de température se fera en mesurant les variations de la tension aux bornes d'une résistance de faible valeur, reliée à la résistance R_{RTD} formant un pont diviseur de tension (figure 3.9). La valeur de la résistance R_{RTD} se situant aux alentours de 30 kΩ (de légères variations de valeur peuvent survenir d'un dispositif à l'autre et changer légèrement cette valeur), on choisira

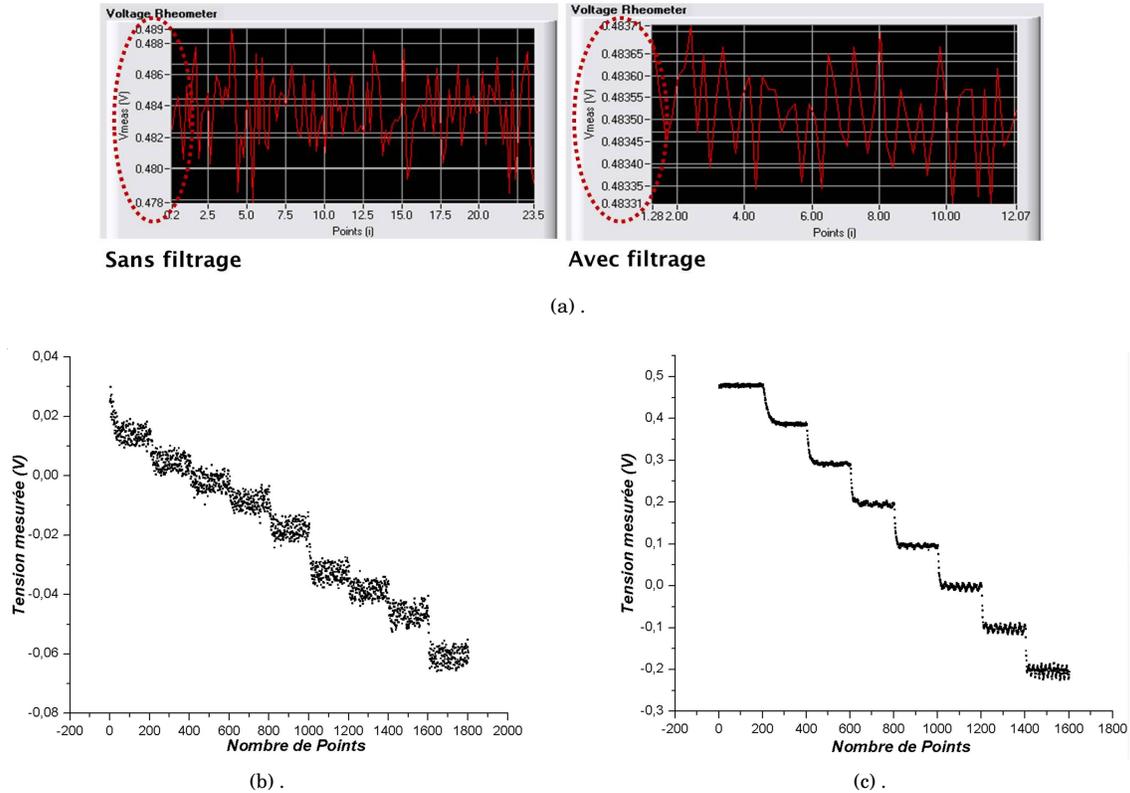


FIGURE 3.10 – **a.** : Augmentation de la précision de mesure des données grâce à l'effet du filtre passe bas en sortie de l'amplificateur. **b.** : Cycle de mesure avec un standard de viscosité (N10 - Paragon Scientific) avant l'amplificateur et l'étape de filtrage. **c.** : Cycle de mesure avec du N10 après l'étape de filtrage et l'amplification.

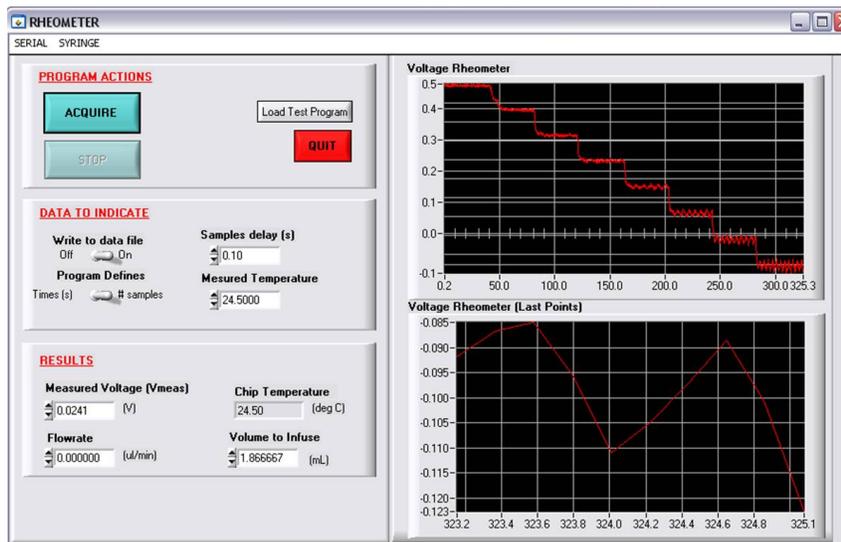


FIGURE 3.11 – Interface de gestion de l'environnement relatif au rhéomètre.

une valeur de 100Ω pour R .

L'étape de calibration de la résistance de température consiste à déposer le dispositif dans un four (initialement à température ambiante) et à mesurer la tension en sortie du pont, puis à augmenter par paliers la température en relevant la tension associée sur une plage allant de 20 à 70°C (figure 3.12a).

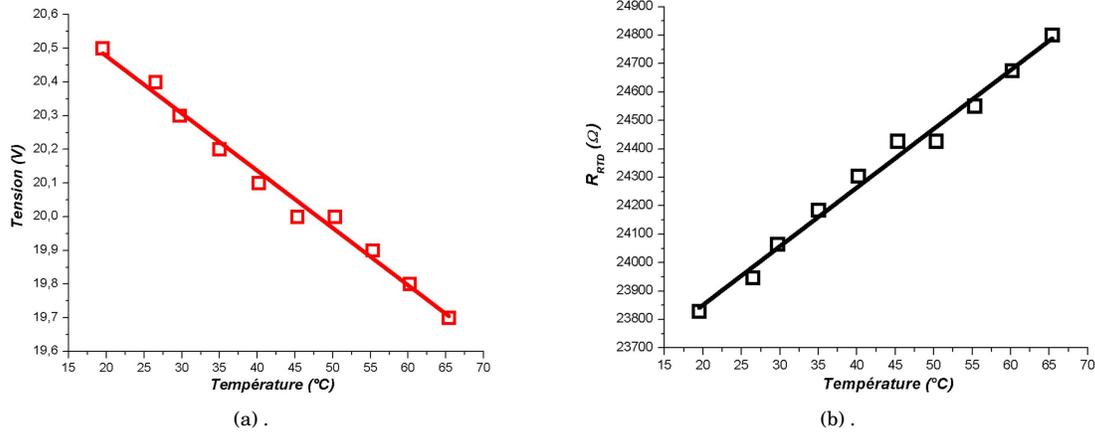


FIGURE 3.12 – Caractérisation de la résistance RTD pour les mesures de température sur puce. **a.** : Evolution de la tension de sortie associée au pont diviseur de mesure de température en fonction de la température. **b.** : Relation entre R_{RTD} et de la température.

Partant de la formule du pont diviseur de tension, le terme correspondant à la résistance R_{RTD} apparaît comme étant égal à :

$$R_{RTD} = ((V_{alim}/V_{RTD}) - 1) \cdot R \quad (3.8)$$

La définition générale du coefficient de température est donnée par la relation suivante :

$$R_{RTD} = R_0 \cdot (1 + \alpha(T - T_0)) \quad (3.9)$$

où α est le coefficient de température de résistance, T la température mesurée, T_0 la température de référence et R_0 la résistance à la température de référence.

Après réarrangement de l'équation 3.9, pour de faibles variations de la température ($R_0 \approx R_{RTD}$), le coefficient α s'écrit :

$$\alpha = \frac{d(\ln(R_{RTD}))}{dT} \quad (3.10)$$

Dans le cas d'une piezorésistance de polysilicium dopé, le TCR (coefficient de température de la résistance) est fonction de la concentration en dopage [79]. La figure 3.12b représente les valeurs de R_{RTD} pour une gamme de température allant de 20 à 70°C . Le coefficient de température α peut alors être déduit à l'aide de l'équation 3.10. Pour ce capteur, α est de $3.64 \cdot 10^{-4} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$, ce qui représente en d'autres termes un TCR de $364 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ (ou $364 \text{ ppm}/\text{K}$) avec une implantation de bore de $5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ à 25 keV .

L'expression de la température en fonction des termes correspondant aux tension et au coefficient de température α s'écrit :

$$T = \left(\frac{V_{mes}}{V_{RTD}} \cdot \frac{V_{alim} - V_{RTD}}{V_{alim} - V_{mes}} - 1 \right) \cdot \frac{1}{\alpha} + T_{mes} \quad (3.11)$$

où V_{mes} correspond à la tension mesurée au début de l'expérience, T_{mes} est la température initiale et V_{RTD} la tension mesurée au cours de l'expérience. Il devient alors possible d'utiliser l'expression 3.11 dans l'interface de contrôle (figure 3.11), afin de mesurer la température *in situ* en temps réel. Au début de chaque expérience, il suffira d'indiquer au programme la température ambiante T_{mes} (déterminée à l'aide d'un thermocouple) pour obtenir pendant le cycle de mesure, la température du fluide circulant dans le rhéomètre.

3.2.3 Méthode de pré-remplissage

La membrane est l'élément de mesure jumelée à la rhéologie du fluide qui permet d'en observer le comportement face à plusieurs perturbations. C'est donc l'environnement (température, débits imposés, géométrie du canal) et les propriétés intrinsèques du liquide qui vont influencer sur la réponse de la membrane. Les membranes sont initialement soumises à l'air. Pour permettre un temps de réponse correct, les jauges doivent être remplies d'un fluide diélectrique (dans notre cas de l'éthanol).

On voit sur la figure 3.13 les canaux qui se remplissent (en bleu). On notera sur ce schéma que le canal secondaire de droite (en bleu ciel) est gravé en face arrière, ce qui signifie que si le fluide est envoyé par l'entrée du dispositif, la membrane va fléchir vers le bas, et une partie du fluide passant dans le canal droit va donc être légèrement aspirée dans le canal secondaire (en bleu ciel). A l'inverse, si l'on pousse par la sortie du dispositif, la membrane va s'étirer vers le haut, poussant ainsi le liquide de pré-remplissage vers l'entrée.

Cette remarque est très importante car par la suite, nous verrons que, lors de certaines expériences réalisées avec un fluide conducteur (eau distillée par exemple), le fluide fini par s'étaler sur la membrane, et un phénomène d'électrolyse se produit créant des bulles de gaz sur la membrane. Or aucune particule, ni bulle de gaz ne doit se trouver dans les canaux secondaires ou autour de la membrane. Dans le cas contraire, en présence d'une bulle d'air par exemple, la compressibilité du gaz modifierait le débit du fluide et par corollaire la pression sur la membrane et donc la réponse du système (phénomène déjà observé dans [52]).

Cette méthode de pré-remplissage (figure 3.13) est donc capitale. Elle consiste à envoyer un fluide diélectrique à travers tout le dispositif à l'aide du pousse-seringue et à aspirer en même temps (par la sortie) le gaz se trouvant à l'intérieur du dispositif, à l'aide de la pompe à vide.

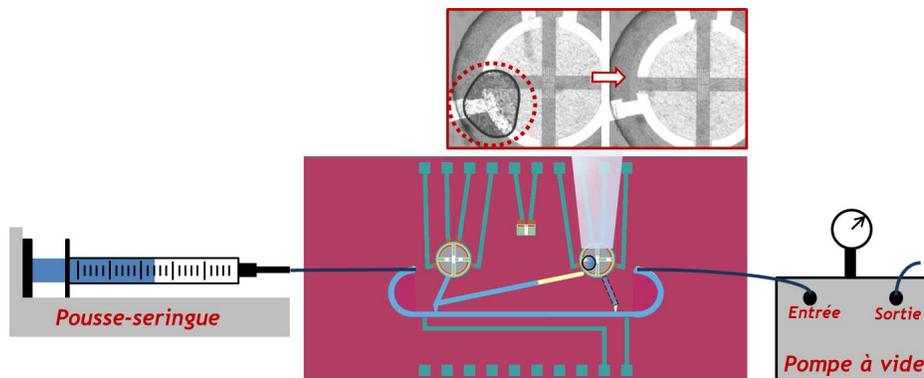


FIGURE 3.13 – Méthode de pré-remplissage du rhéomètre pour chaque première utilisation. Utilisation du pousse seringue PHD Ultra (Harvard Apparatus), et de la pompe à vide (Vacuumbrand).

Lorsque la quasi totalité du dispositif est remplie, il subsiste une bulle de gaz que nous faisons disparaître en remplaçant la pompe à vide par un second pousse seringue qui envoie le même fluide

que celui en entrée. De cette manière, la quantité de liquide à l'intérieur de la puce est augmentée, forçant le gaz à se diffuser totalement dans le fluide (microphotographies de la figure 3.13) pour finalement, ne laisser que du liquide (phénomène de dissolution expliqué en section 1.8).

3.2.4 Coefficient de calibration

En tout premier lieu, il est essentiel de calibrer la jauge de pression du microrhéomètre. En effet, les principales expériences à venir concernent la mesure de viscosité de fluides newtoniens et non newtoniens en fonction du taux de cisaillement. Pour pouvoir obtenir une valeur cohérente de la viscosité, il faut avant tout pouvoir lire de façon très précise la perte de charge le long du canal en amont et en aval de la jauge de pression différentielle. Ce coefficient permettra alors de convertir une différence de potentiel issue du transducteur MEMS en différence de pression.

La déflexion de la membrane induite par la pression qui lui est appliquée se traduit par la différence de tension issue du pont de Wheatstone (figure 3.9). En effectuant une série de mesures pour différents fluides connus et dont le comportement et la viscosité sont des paramètres définis par le fabricant, il sera possible de déterminer un coefficient de calibration propre au rhéomètre. Afin de déterminer de façon plus aisée ce coefficient, on choisira pour les expériences de calibration, de ne travailler qu'avec des fluides newtoniens afin d'obtenir une évolution linéaire de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement.

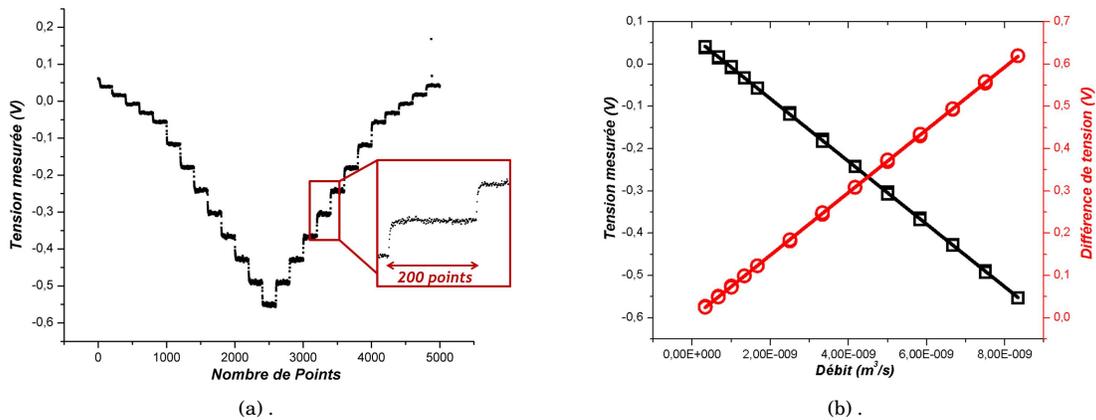


FIGURE 3.14 – **a.** : Cycle complet d'une mesure de viscosité pour un liquide newtonien. **b.** : Valeur du signal mesuré (moyenne des 100 derniers points de mesure) en fonction du débit - Différence de tension soustraite par rapport à la tension mesurée à débit nul.

Pour réaliser une mesure complète (figure 3.14a), le liquide est injecté à des débits croissants (par paliers de 200 points) jusqu'à un à débit maximal, puis de façon dégressive par ces mêmes débits. Cette opération a pour but de vérifier que chaque mesure est reproductible et qu'il n'y a pas de phénomène d'hystérèse avec le rhéomètre. Cette tâche est réalisée par l'interface de contrôle *CVI LabWindows* (figure 3.11) qui pilote automatiquement le pousse-seringue après avoir lu un procédé de travail écrit selon un programme spécifique au fluide à analyser.

Ainsi, pour obtenir le coefficient de calibration de chaque rhéomètre, la première étape consiste à relever la différence de potentielle issue du pont de Wheatstone lorsque la membrane est au repos (aucun débit imposé). Une fois le cycle de mesures (figure 3.14a) terminé, on effectue la moyenne des tensions associées à chaque débit. Afin de ne pas tenir compte des valeurs de tension correspondant au régime transitoire (détails en section 3.2.5), on recueille uniquement les dernières valeurs de mesure (100 derniers points) pour déterminer la tension moyenne relative au débit imposé (motifs carrés figure 3.14b). Ces tensions moyennées sont ensuite soustraites à la tension de référence mesurée à débit nul (motifs ronds figure 3.14b).

On rappelle que lors d'un écoulement laminaire avec un fluide incompressible, la relation suivante s'applique : $\Delta P = R_h \cdot Q$ où ΔP est la différence de pression de part et d'autre du canal, R_h est la résistance hydrodynamique du canal et Q le débit volumique. Dans notre cas on mesure une différence de tension ΔV en fonction du débit imposé où $\Delta V = \beta \cdot Q$ avec β le terme relatif à la viscosité de chaque fluide. De ce fait, le coefficient β est proportionnel à la résistance hydrodynamique (dans le cas de fluide newtoniens).

Une régression linéaire des droites d'écoulement (toujours dans le cas de fluides newtoniens) permet alors d'obtenir le coefficient β . La résistance hydrodynamique théorique est déterminée en fonction de la géométrie du canal et de la viscosité du fluide à la température de l'expérience approximée à l'aide d'une fonction de régression pour chaque fluide dont la viscosité est donnée par le fabricant ou dans la littérature ([80] dans le cas du glycérol) illustrées en figure 3.19. Le ratio entre les deux paramètres β et R_h fait ainsi apparaître le terme correspondant au facteur de calibration du micro-rhéomètre.

Sachant que d'une expérience à l'autre, ce coefficient peut varier, et ce notamment à cause de la température qui modifierait le coefficient de température de la jauge piezorésistive, on réalisera donc une série de mesures en utilisant plusieurs fluides à différentes températures afin de déterminer un coefficient de conversion (ratio R_h/β) moyen. Pour ces mesures, nous avons utilisé du dodécane, de l'hexadécane, des standards de viscosité (N10 et N100 *Paragon Scientific*), ainsi que des mélanges de eau-glycérol à différentes concentrations (voir figure 3.19). Les coefficients obtenus sont ensuite moyennés pour faire apparaître un coefficient de calibration propre au rhéomètre (tableaux 3.2 et 3.3).

Dans les tableaux 3.2 et 3.3, on relèvera la température au cours de l'expérience, permettant de déterminer la viscosité théorique η_{th} du liquide (à l'aide des données issues de la littérature) afin de calculer la résistance hydrodynamique R_h . Le coefficient β issu des mesures relevées au cours de l'expérience permet d'obtenir le coefficient de calibration (ratio R_h/β).

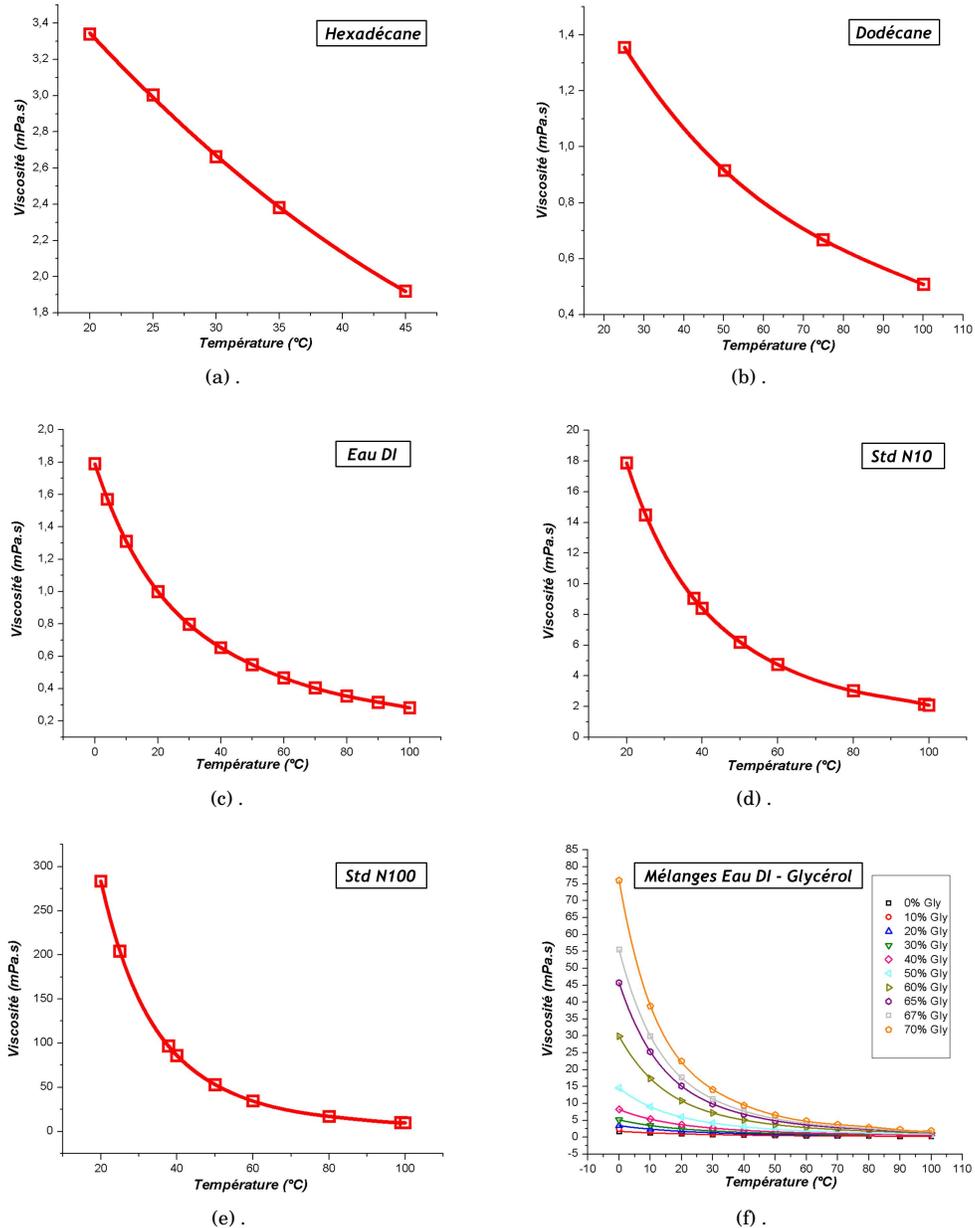


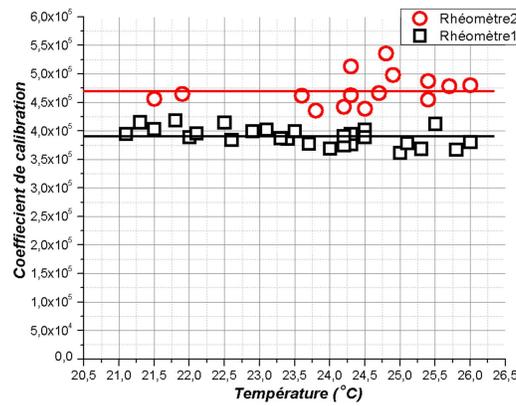
FIGURE 3.15 – Courbe de viscosité en fonction de la température des liquides newtoniens utilisés aux cours des expériences (données issues de la littérature). **a.** : Hexadécane. **b.** : Dodécane. **c.** : Eau DI. **d.** : Standard de viscosité N10. **e.** : Standard de viscosité N100. **f.** : Mélanges eau DI-glycérol à différentes concentrations.

TABLE 3.2 – Expériences réalisées pour définir le coefficient de calibration pour le Rhéomètre 1.

Rheomètre1		Dodécane					
Température (°C)	η_{th} (Pa·s)	Pente β (V·s/m ³)	R_h (Pa·s/m ³)	Ratio (R_h/β)	Ecart Type	Ratio _{moyen}	Erreur (%)
22	1,4278·10 ⁻³	5,46673·10 ⁶	2,127·10 ¹²	3,8908·10 ⁵	1,7073·10 ⁴	3,9619·10 ⁵	4,3
22,1	1,4254·10 ⁻³	5,37001·10 ⁶	2,123·10 ¹²	3,9542·10 ⁵			
21,8	1,4326·10 ⁻³	5,09829·10 ⁶	2,134·10 ¹²	4,1860·10 ⁵			
21,5	1,4399·10 ⁻³	5,31392·10 ⁶	2,145·10 ¹²	4,0366·10 ⁵			
22,5	1,4158·10 ⁻³	5,08792·10 ⁶	2,109·10 ¹²	4,1454·10 ⁵			
22,6	1,4134·10 ⁻³	5,48050·10 ⁶	2,105·10 ¹²	3,8419·10 ⁵			
25,5	1,3464·10 ⁻³	4,86557·10 ⁶	2,005·10 ¹²	4,1223·10 ⁵			
24,5	1,3691·10 ⁻³	5,06582·10 ⁶	2,039·10 ¹²	4,0261·10 ⁵			
21,1	1,4496·10 ⁻³	5,46514·10 ⁶	2,159·10 ¹²	3,9514·10 ⁵			
21,3	1,4477·10 ⁻³	5,19315·10 ⁶	2,156·10 ¹²	4,1529·10 ⁵			
22,9	1,4063·10 ⁻³	5,23987·10 ⁶	2,095·10 ¹²	3,9981·10 ⁵			
23,1	1,4016·10 ⁻³	5,18572·10 ⁶	2,087·10 ¹²	4,0264·10 ⁵			
25,0	1,3577·10 ⁻³	5,59391·10 ⁶	2,022·10 ¹²	3,6157·10 ⁵			
25,8	1,3397·10 ⁻³	5,43416·10 ⁶	1,995·10 ¹²	3,6726·10 ⁵			
26,0	1,3352·10 ⁻³	5,22331·10 ⁶	1,989·10 ¹²	3,8080·10 ⁵			
24,3	1,3736·10 ⁻³	5,42792·10 ⁶	2,046·10 ¹²	3,7699·10 ⁵			
Standard N10							
Température (°C)	η_{th} (Pa·s)	Pente β (V·s/m ³)	R_H (Pa·s/m ³)	Ratio (R_h/β)	Ecart Type	Ratio _{moyen}	Erreur (%)
24,2	1,4981·10 ⁻²	5,94996·10 ⁷	2,231·10 ¹³	3,7509·10 ⁵	7,5005·10 ⁻³	3,7901·10 ⁻⁵	1,98
24,0	1,5104·10 ⁻²	6,09107·10 ⁷	2,250·10 ¹³	3,6941·10 ⁵			
23,7	1,5291·10 ⁻²	6,03630·10 ⁷	2,278·10 ¹³	3,7739·10 ⁵			
23,4	1,5482·10 ⁻²	5,97297·10 ⁷	2,306·10 ¹³	3,8615·10 ⁵			
23,3	1,5546·10 ⁻²	5,98446·10 ⁷	2,316·10 ¹³	3,8700·10 ⁵			
Standard N100							
Température (°C)	η_{th} (Pa·s)	Pente β (V·s/m ³)	R_h (Pa·s/m ³)	Ratio (R_h/β)	Ecart Type	Ratio _{moyen}	Erreur (%)
25,3	2,0031·10 ⁻¹	8,09218·10 ⁸	2,984·10 ¹⁴	3,6875·10 ⁵	1,1386·10 ⁴	3,8696·10 ⁵	2,94
25,1	2,0288·10 ⁻¹	7,98834·10 ⁸	3,022·10 ¹⁴	3,7834·10 ⁵			
24,3	2,1357·10 ⁻¹	8,06184·10 ⁸	3,181·10 ¹⁴	3,9465·10 ⁵			
24,5	2,1084·10 ⁻¹	8,07274·10 ⁸	3,140·10 ¹⁴	3,8907·10 ⁵			
24,2	2,1496·10 ⁻¹	8,18284·10 ⁸	3,202·10 ¹⁴	3,9134·10 ⁵			
23,5	2,2493·10 ⁻¹	8,38535·10 ⁸	3,350·10 ¹⁴	3,9960·10 ⁵			

TABLE 3.3 – Expériences réalisées pour définir le coefficient de calibration pour le Rhéomètre2.

Rheomètre2		Dodécane					
Température (°C)	η_{th} (Pa·s)	Pente β (V·s/m ³)	R_h (Pa·s/m ³)	Ratio (R_h/β)	Ecart Type	Ratio _{moyen}	Erreur (%)
24,70	$1,3645 \cdot 10^{-3}$	$4,35876 \cdot 10^6$	$2,032 \cdot 10^{12}$	$4,6636 \cdot 10^5$	$7,9710 \cdot 10^3$	$4,6073 \cdot 10^5$	1,73
25,40	$1,3486 \cdot 10^{-3}$	$4,41483 \cdot 10^6$	$2,009 \cdot 10^{12}$	$4,5509 \cdot 10^5$			
Standard N10							
Température (°C)	η_{th} (Pa·s)	Pente β (V·s/m ³)	R_h (Pa·s/m ³)	Ratio (R_h/β)	Ecart Type	Ratio _{moyen}	Erreur (%)
23,8	$1,5229 \cdot 10^{-2}$	$5,20697 \cdot 10^7$	$2,268 \cdot 10^{13}$	$4,3570 \cdot 10^5$	$1,2439 \cdot 10^4$	$4,5185 \cdot 10^5$	2,75
24,2	$1,4981 \cdot 10^{-2}$	$5,04640 \cdot 10^7$	$2,231 \cdot 10^{13}$	$4,4225 \cdot 10^5$			
24,5	$1,4798 \cdot 10^{-2}$	$5,02146 \cdot 10^7$	$2,204 \cdot 10^{13}$	$4,3903 \cdot 10^5$			
21,5	$1,6766 \cdot 10^{-2}$	$5,47180 \cdot 10^7$	$2,497 \cdot 10^{13}$	$4,5646 \cdot 10^5$			
21,9	$1,6484 \cdot 10^{-2}$	$5,28135 \cdot 10^7$	$2,455 \cdot 10^{13}$	$4,6498 \cdot 10^5$			
23,6	$1,5355 \cdot 10^{-2}$	$4,95270 \cdot 10^7$	$2,287 \cdot 10^{13}$	$4,6186 \cdot 10^5$			
24,3	$1,4920 \cdot 10^{-2}$	$4,80387 \cdot 10^7$	$2,222 \cdot 10^{13}$	$4,6268 \cdot 10^5$			
Standard N100							
Température (°C)	η_{th} (Pa·s)	Pente β (V·s/m ³)	R_h (Pa·s/m ³)	Ratio (R_h/β)	Ecart Type	Ratio _{moyen}	Erreur (%)
24,8	$2,0681 \cdot 10^{-1}$	$5,74974 \cdot 10^8$	$3,081 \cdot 10^{14}$	$5,3585 \cdot 10^5$	$2,2180 \cdot 10^4$	$4,9889 \cdot 10^5$	4,44
24,3	$2,1357 \cdot 10^{-1}$	$6,20119 \cdot 10^8$	$3,181 \cdot 10^{14}$	$5,1307 \cdot 10^5$			
24,90	$2,0549 \cdot 10^{-1}$	$6,14534 \cdot 10^8$	$3,061 \cdot 10^{14}$	$4,9815 \cdot 10^5$			
25,40	$1,9903 \cdot 10^{-1}$	$6,08207 \cdot 10^8$	$2,965 \cdot 10^{14}$	$4,8752 \cdot 10^5$			
25,70	$1,9528 \cdot 10^{-1}$	$6,07915 \cdot 10^8$	$2,909 \cdot 10^{14}$	$4,7854 \cdot 10^5$			
26,00	$1,9160 \cdot 10^{-1}$	$5,94414 \cdot 10^8$	$2,854 \cdot 10^{14}$	$4,8020 \cdot 10^5$			

FIGURE 3.16 – Evolution du coefficient de calibration en fonction de la température (fluides utilisés répertoriés dans les tableaux 3.2 et 3.3). Coefficients moyens Rhéomètre1 : $3,7838 \cdot 10^5$ et Rhéomètre2 : $4,7049 \cdot 10^5$

Lors des expériences de calibration (figure 3.16), deux rhéomètres ont été utilisés pour observer l'évolution du facteur de calibration en fonction de la température (voir tableaux 3.2 et 3.3).

Dans le cas d'un capteur de pression en polysilicium, les valeurs des résistances peuvent être altérées à cause de la température, ce qui peut induire des changements dans les mesures du capteur de pression. La gamme de température sur la totalité des mesures de calibration est comprise entre $21,1^\circ\text{C}$ et 26°C et on observe que pour les deux rhéomètres, les variations du coefficient de calibration sont très faibles ($\approx 3,1\%$ pour le Rhéomètre1 et $\approx 2,97\%$ pour le Rhéomètre2). Par conséquent, la légère variation du coefficient de température des jauges sur chacun des deux dispositifs n'affecte pas de manière significative les mesures. Nous considérons l'effet de la température (comprise dans

cette gamme) négligeable sur les résistances du pont et que les mesures obtenues sont pertinentes.

Le phénomène d'échauffement thermique lié à la viscosité du fluide en fonction de sa vitesse d'écoulement lorsque celui-ci est soumis à un fort taux de cisaillement peut également altérer les mesures. Pour déterminer l'échauffement thermique du fluide, nous utiliserons les relations détaillées en section 1.1.3.3. On se focalisera uniquement sur le canal principal droit du microrhéomètre dont les dimensions sont rappelées tableau 3.4 :

TABLE 3.4 – Dimensions du microcanal principal du microrhéomètre.

Canal	Hauteur H (μm)	Largeur W (μm)	Longueur L (cm)	Diamètre hydrodynamique D_h (μm)
droit	75	200	0.8	109.09

Dans le cadre de cette étude portée sur la mesure de viscosité de fluides newtoniens à forts taux de cisaillement, nous avons débuté nos expériences avec le dodécane. Nous observerons lors des premières expériences de caractérisation que le débit maximum avec cette membrane peut atteindre des valeurs supérieures à $1mL/min$ pour un fluide possédant une viscosité de $1mPa \cdot s$ (eau DI). Cependant, nous avons décidé de conserver ce débit comme étant le débit à ne pas dépasser par mesure de sécurité. Nous avons en effet tenté de dépasser ce seuil ($\approx 2mL/min$), ce qui a eu pour conséquence de briser la membrane et de rompre à certains endroits la soudure anodique (fissure du verre). Les procédés de travail pour imposer le débit au pousse-seringue sont alors relativisés par rapport à cette valeur maximale ($200\mu L/min$ pour un fluide ayant une viscosité de $5mPa \cdot s$ par exemple). La gamme des opérations (taux de cisaillement, nombre de Reynolds, échauffement thermique) a été synthétisée dans le tableau 3.5 :

TABLE 3.5 – Expérience avec du dodécane à une température de $22.1^\circ C$ ($\eta_{th}=1.425mPa \cdot s, \rho_{dodécane} = 780.8kg/m^3$ [81] et C_m pour $22.1^\circ C = 2207,35J/(kg.K)$).

Débites pousse-seringue ($\mu L/min$)	Débit (m^3/s)	$\dot{\gamma}_w$ (s^{-1})	Re	échauffement thermique ($^\circ C$)
10	$1.67 \cdot 10^{-10}$	888.88	7,062867E-01	$2,053441E \cdot 10^{-4}$
100	$1.67 \cdot 10^{-9}$	8888.88	7,062867E+00	$2,053441E \cdot 10^{-3}$
200	$3.33 \cdot 10^{-9}$	17777.77	1,412573E+01	$4,106882E \cdot 10^{-3}$
300	$5.00 \cdot 10^{-9}$	26666.66	2,118860E+01	$6,160323E \cdot 10^{-3}$
400	$6.67 \cdot 10^{-9}$	35555.55	2,825147E+01	$8,213764E \cdot 10^{-3}$
500	$8.33 \cdot 10^{-9}$	44444.44	3,531434E+01	$1,026721E \cdot 10^{-2}$
600	$1.00 \cdot 10^{-8}$	53333.33	4,237720E+01	$1,232065E \cdot 10^{-2}$
700	$1.17 \cdot 10^{-8}$	62222.22	4,944007E+01	$1,437409E \cdot 10^{-2}$
800	$1.33 \cdot 10^{-8}$	71111.11	5,650294E+01	$1,642753E \cdot 10^{-2}$

On observe que pour l'ensemble des débits imposés au fluide (correspondant à une gamme de taux de cisaillement de $8 \cdot 10^2 < \dot{\gamma}_w < 7 \cdot 10^4$), que l'échauffement visqueux est négligeable même à forts taux de cisaillement. Par ailleurs, pour l'ensemble de ces mesures, le nombre de Reynolds se situe dans la gamme $0.7 < Re < 56$, très inférieure à la limite au-delà de laquelle l'écoulement devient turbulent ($Re = 2000$).

3.2.5 Temps de réponse du système

Dans la section 3.2.4 on observé que lorsque le débit varie (passage d'un palier à un autre), le signal évolue de façon exponentielle avant de se stabiliser à une valeur constante (agrandissement de la figure 3.14a). Ce régime transitoire est induit par des éléments capacitifs et résistifs extérieurs au système, dus d'une part aux tubes en PEEK utilisés pour connecter le pousse-seringue au

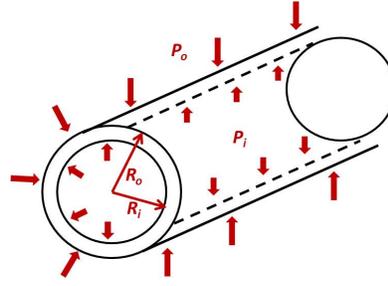


FIGURE 3.18 – *Cylindre soumis à une pression extérieure P_o et à une pression intérieure P_i .*

microrhéomètre, mais également aux seringues elles même.

L'écoulement est de type laminaire avec un fluide incompressible. Le temps de réponse caractéristique de ce régime transitoire est donc analogue à celui d'un circuit RC série en électronique et s'exprime par $\tau_{tube} = R_{tube} \cdot C_{tube}$ où R_{tube} et C_{tube} sont respectivement la résistance et la capacité hydrodynamique du capillaire. Lorsque le fluide est injecté par une seringue, on considère que la capacité hydrodynamique de la seringue est très supérieure à celle du capillaire ($C_{seringue} \gg C_{tube}$) du fait de son diamètre très supérieur à celui du tube. Quant à la résistance hydrodynamique du capillaire, elle sera considérée beaucoup plus grande que celle de la seringue ($R_{seringue} \ll R_{tube}$), le rayon du tube étant très inférieur à celui de la seringue. Le temps nécessaire au débit pour se stabiliser est alors égal à $\tau = R_{tube} \cdot C_{seringue}$ (figure 3.17).

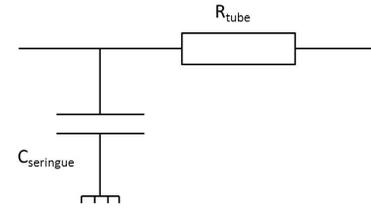


FIGURE 3.17 – *Equivalence électrique du circuit seringue-capillaire.*

La valeur de la résistance hydrodynamique du tube se calcule de façon triviale en appliquant la formule 1.14 (voir section 1.1.2.4). En revanche, pour déterminer la valeur de la capacité hydrodynamique, le calcul nécessite de connaître la déformation d'un cylindre soumis à une pression interne (figure 3.18). On supposera pour simplifier les calculs que la pression est uniforme à l'intérieur du capillaire.

D'après [28] la déformation que subit le cylindre est un déplacement radial de tous les points de la paroi. Ce déplacement u varie en fonction du rayon r du tube.

L'équation permettant de définir le déplacement d'un point quelconque de la parois du cylindre est donnée par :

$$u = \frac{1-v}{E} \frac{a^2 P_i + b^2 P_o}{b^2 - a^2} r + \frac{1+v}{E} \frac{a^2 b^2 (P_i - P_o)}{(b^2 - a^2) r} \quad (3.12)$$

avec v le ratio de Poisson, E le module de Young, P_i et P_o les pressions intérieure et extérieurs du tube et R_i et R_o respectivement le rayon intérieur et extérieur du tube.

Dans le cas particulier où le cylindre est soumis uniquement à une pression intérieure (impliquant $P_o = 0$), l'expression du déplacement radial d'un point de la surface intérieure est donné par la relation 3.12 simplifiée :

$$u_{r=a} = \frac{a P_i}{E} \left(\frac{a^2 + b^2}{b^2 - a^2} + v \right) \quad (3.13)$$

On rappelle la définition de la résistance hydrodynamique dans une géométrie cylindrique :

$$R_h = \frac{8\eta L}{\pi R^4} \quad (3.14)$$

TABLE 3.6 – Récapitulatif des valeurs des paramètres de la seringue en verre et du tube en PEEK utilisés au cours des expériences.

	Seringue Verre 5mL	Tube en PEEK
Rayon extérieur (m)	$6.985 \cdot 10^{-3}$	$3.96875 \cdot 10^{-4}$
Rayon intérieur (m)	$5.15 \cdot 10^{-3}$	$2.54 \cdot 10^{-4}$
Longueur (m)	$6 \cdot 10^{-2}$	$2.5 \cdot 10^{-1}$
Ratio de Poisson	$1.8 \cdot 10^{-1}$	$4 \cdot 10^{-1}$
Module de Young (Pa)	$6.9 \cdot 10^{10}$	$3.6 \cdot 10^9$

et le temps de réponse du système illustré figure 3.17 :

$$\tau = R_{tube} \cdot C_{seringue} \quad (3.15)$$

L'équation 3.15 suggère que lorsque l'on accroît la viscosité du fluide, le temps de réponse se voit augmenté de façon significative. Pour illustrer ce phénomène, on propose de réaliser une série de trois expériences au cours desquelles on utilise du dodécane ainsi que deux standards de viscosité N10 et N100. Les viscosités à température ambiante pour ces trois fluides sont respectivement $1.3mPa \cdot s$, $14.4mPa \cdot s$ et $206mPa \cdot s$.

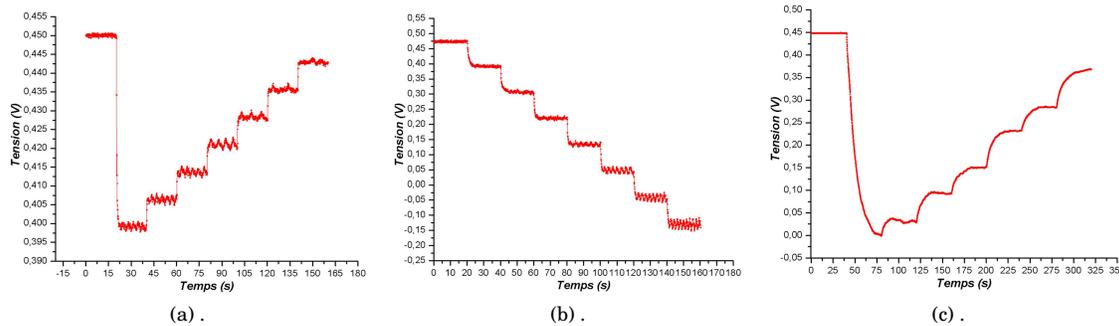


FIGURE 3.19 – Influence de la viscosité du fluide sur le temps de réponse du système. **a.** : Cycle de mesure (inversé) avec du dodécane ($1.3mPa \cdot s$). **b.** : Cycle de mesure avec le standard de viscosité N10 ($14.4mPa \cdot s$). **c.** : Cycle de mesure (inversé) avec le standard de viscosité N100 ($206mPa \cdot s$).

La méthode utilisée pour déterminer la capacité hydrodynamique de la seringue et du tube en PEEK est la suivante :

- ① : En fonction de la viscosité de chacun des fluides utilisés, on détermine la résistance hydrodynamique de la seringue et du tube à l'état de repos pour pouvoir ensuite déterminer la pression interne P_i lors de chaque palier de débits imposés par le pousse seringue ($P_i = R_h \cdot Q$).
- ② : Parallèlement, on calcule à l'aide de l'équation 3.13 le nouveau rayon augmenté de la distance due à la déformation ($R+dR$ avec dR la distance augmentée du rayon provoquée par la déformation).
- ③ : Ce nouveau rayon est ensuite utilisé pour déterminer le nouveau volume interne de la seringue et du tube dilatés $V_i(R+dR)$, à partir de quoi il est possible d'estimer l'augmentation du volume (ΔV_i) par rapport à un état au repos ($\Delta V_i = V_i(R+dR) - V_i$).
- ④ : Le ratio entre cette différence de volume et la pression interne associée au débit ($\Delta V_i/P_i$) permet d'obtenir la capacité hydrodynamique correspondant à chaque changement de débit. Le rayon

étant affecté lors de l'augmentation progressive du débit, la résistance hydrodynamique de la seringue et du tube se trouve également modifiée. Cette valeur doit être recalculée pour obtenir le temps de réponse du système seringue-tube à chaque nouveau changement de palier. Le produit de la résistance hydrodynamique du tube et de la capacité hydrodynamique de la seringue (équation 3.15) permet alors d'obtenir le temps de réponse du système seringue-tube pour chacun des fluides utilisés.

On obtient ainsi pour chacun des trois liquides testés des temps de réponse moyens de $0.102ms$, $1.1367ms$, $16.26ms$ pour les cycles en figures 3.19a, 3.19b, 3.19c respectivement .

Sur chacune de ces figures, on peut voir clairement que plus la viscosité du fluide est grande, plus le temps est important pour que le débit se stabilise. Cependant les temps de régime transitoire déterminés précédemment dans le système seringue-tube ne correspondent pas à ceux que l'on peut observer sur les cycles de mesure en figure 3.19. On peut en effet mesurer sur chacune des trois figures un temps de réponse de l'ordre de $0.4s$ pour le dodécane, $5s$ pour le N10 et $25s$ dans le cas du N100. Il paraît alors évident que d'autres sources de perturbations externes induisent un temps de réponse du système supérieur à celui du circuit seringue-tube. Les travaux de Pipe et al. [52] sur le microrhéomètre VROC de *RheoSense* ont permis de mettre en évidence une augmentation conséquente du régime transitoire provoquée par la présence d'une bulle dans le capteur. Cette bulle d'air a pour effet d'imposer un temps de réponse de l'ordre de $10s$ pour chaque palier de débit. On peut alors supposer qu'une bulle d'air était toujours présente dans la puce au moment de l'expérience (sous la partie inférieure de la membrane par exemple).

Si l'on considère une bulle d'air d'un rayon de $0.4mm$ et une tension de surface de $25mN/m$ pour chacun des trois fluides testés, on obtient une capacité équivalente induite par la bulle d'air $C_{bulle}=2.14 \cdot 10^{-12} m^3/Pa$ (d'après l'équation 1.16 $V = C_h \cdot P$). Il en résulte une augmentation significative des temps de réponse du système dans le cas du dodécane, N10 et N100 qui valent respectivement $0.427s$, $4.72s$ et $67.5s$. A la vue de ces valeurs théoriques en adéquation avec les valeurs mesurées sur la figure 3.19, on peut alors affirmer qu'une bulle d'air était bien présente au moment de chacune des expériences. Le temps calculé pour le N100 est plus élevé que celui mesuré et peut s'expliquer simplement par le fait que la bulle était d'un rayon moindre (de l'ordre de $0.1mm$ ce qui entraîne un temps de réponse théorique de $28s$). Par ailleurs, on observe sur les figures 3.19a et 3.19b des fluctuations périodiques dues au pousse-seringue, qui ont également pu être observées dans l'étude de Pipe et al.

3.2.6 Protocole analytique - détermination des courbes d'écoulement

Dans cette section, nous présentons la méthode employée pour recueillir et interpréter les données qui nous permettent de déterminer la viscosité d'un fluide qu'il soit newtonien ou non-newtonien en fonction du taux de cisaillement.

Dans une géométrie rectangulaire où le ratio d'aspect est très inférieur à 1, c'est à dire que la largeur W est infiniment grande par rapport à la hauteur H ($H \ll W$), la contrainte de cisaillement au mur est définie par :

$$\sigma_w = \frac{H \cdot \Delta P}{2 \cdot L}$$

Ainsi pour les fluides newtoniens, on a la relation suivante :

$$\frac{H \cdot \Delta P}{2 \cdot L} = \eta \cdot \left(\frac{6 \cdot Q}{W \cdot H^2} \right)$$

avec le taux de cisaillement apparent (identique au taux de cisaillement au mur dans le cas de fluides newtoniens) qui se définit par :

$$\dot{\gamma}_a = \frac{6 \cdot Q}{W \cdot H^2}$$

Dans le cas d'un fluide non-newtonien, la mesure du taux de cisaillement au mur est plus complexe que pour un fluide newtonien. Le taux de cisaillement au mur, dans le cas d'un fluide incompressible newtonien résulte alors en un taux de cisaillement apparent $\dot{\gamma}_a$. Pour un fluide non-newtonien, le taux de cisaillement au mur "vrai" peut être déterminé en utilisant la correction de Weissenberg - Rabinowitsch - Mooney [52] :

$$\dot{\gamma}_w = \frac{2n+1}{3n} \cdot \dot{\gamma}_a \quad \text{avec} \quad n = \frac{d(\ln \sigma_w)}{d(\ln \dot{\gamma}_a)}$$

Dans le cas d'une géométrie rectangulaire où H est du même ordre de grandeur que W , il faut tenir compte du facteur lié à l'aspect géométrique. Ainsi la contrainte de cisaillement au mur s'exprime par :

$$\sigma_w = \frac{H \cdot \Delta P}{2 \cdot L} \left(\frac{1}{H/W + 1} \right) \quad (3.16)$$

La relation liant la contrainte de cisaillement au mur et le taux de cisaillement apparent est donnée par :

$$\frac{H \cdot \Delta P}{2 \cdot L} \left(\frac{1}{H/W + 1} \right) = \eta \cdot \frac{6 \cdot Q}{W \cdot H^2} \left(1 + \frac{H}{W} \right) f^* \quad (3.17)$$

où le taux de cisaillement apparent se définit par :

$$\dot{\gamma}_a = \frac{6 \cdot Q}{W \cdot H^2} \left(1 + \frac{H}{W} \right) f^* \quad (3.18)$$

La fonction f^* est calculée à partir du tableau 3.7 et, est fonction de a^* et b^* qui sont des paramètres relatifs à la géométrie rectangulaire du canal. Dans notre cas présent, nous avons $H=75 \mu m$ et $W=200 \mu m$ ce qui donne un ratio $H/W=0.375$. A l'aide d'une fonction d'approximation issue des travaux de [82], nous avons pu déterminer les coefficients géométriques correspondant aux dimensions du dispositif. Pour $H/W=0.375 \mu m$ on obtient $a^*=0.27312$, $b^*=0.76571$ et $f^*=0.69257$.

TABLE 3.7 – Constantes géométriques a^* , b^* et f^* pour une géométrie à canal rectangulaire [82].

H/W	a^*	b^*	f^*	H/W	a^*	b^*	f^*
0.00	0.5000	1.0000	1.0000	0.55	0.2360	0.7163	0.6348
0.05	0.4535	0.9513	0.9365	0.60	0.2297	0.7065	0.6242
0.10	0.4132	0.9098	0.8820	0.65	0.2248	0.6985	0.6155
0.15	0.3781	0.8745	0.8351	0.70	0.2208	0.6921	0.6085
0.20	0.3475	0.8444	0.7946	0.75	0.2178	0.6870	0.6032
0.25	0.3212	0.8183	0.7597	0.80	0.2155	0.6831	0.5991
0.30	0.2991	0.7954	0.7297	0.85	0.2139	0.6803	0.5961
0.35	0.2809	0.7750	0.7040	0.90	0.2129	0.6785	0.5942
0.40	0.2659	0.7571	0.6820	0.95	0.2123	0.6774	0.5931
0.45	0.2538	0.7414	0.6634	1.00	0.2121	0.6771	0.5928
0.50	0.2439	0.7278	0.6478				

Pour déterminer le taux de cisaillement "vrai" au mur, les travaux présentés dans [82] proposent une formule tenant compte du facteur d'aspect de la géométrie et du coefficient n du fluide :

$$\dot{\gamma}_w = \dot{\gamma}_a \left(\frac{2}{3} \right) \left(\frac{b^*}{f^*} + \frac{a^*}{f^*} \frac{1}{n} \right) \quad (3.19)$$

Cette formule s'applique donc dans le cas d'un fluide newtonien (où $n = 1$ et $\dot{\gamma}_w = \dot{\gamma}_a$) et dans le cas de fluides non-newtoniens (où n est supérieur ou inférieur à 1 selon qu'il soit rhéopaisissant ou rhéofluidifiant).

Le protocole que nous appliquons pour déterminer les courbes d'écoulement de fluides newtoniens et non-newtoniens est le suivant :

- ① : On élabore un programme de pilotage de la pompe avec des plateaux de 25s à chaque débit Q imposé.
- ② : Recueillir l'ensemble des tensions associées à chacun des débits du programme (imposés au pousse-seringue) en commençant impérativement chaque expérience par la tension à débit nul c'est à dire lorsque la jauge est au repos.
- ③ : Relativiser chacune des tensions par rapport à la valeur de la tension à débit nul, puis les multiplier par le facteur de calibration du rhéomètre pour obtenir la perte de charge ΔP le long du canal.
- ④ : Obtenir la contrainte de cisaillement au mur σ_w et le taux de cisaillement apparent $\dot{\gamma}_a$.
- ⑤ : Calculer $\log(\sigma_w)$ et $\log(\dot{\gamma}_a)$ et obtenir le n en traçant $\log(\sigma_w)$ contre $\log(\dot{\gamma}_a)$, n étant le coefficient de la droite obtenue.
- ⑥ : Calculer le taux de cisaillement "vrai" au mur $\dot{\gamma}_w$.
- ⑦ : Enfin, faire le ratio entre σ_w et $\dot{\gamma}_w$ pour obtenir la viscosité.

3.3 Mesures à débits contrôlés

3.3.1 Mesures avec des fluides newtoniens

La méthode de calcul définie en section 3.2.6 est employée pour l'ensemble des mesures de viscosité de fluides newtoniens. Les tableaux 3.8-3.10 regroupent respectivement les données nécessaires à la caractérisation du dodécane, du N10 et du N100. A titre d'exemple, on illustre chaque étape du protocole de la section 3.2.6 à partir de l'expérience réalisée avec le dodécane dont les données sont répertoriées dans le tableau 3.8 :

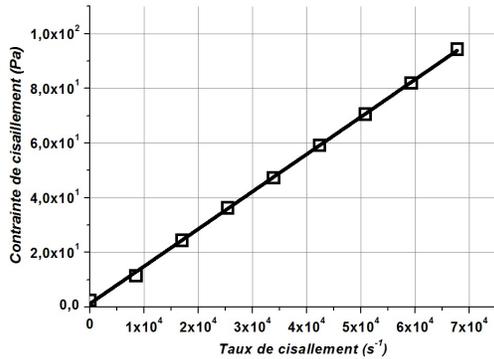
La colonne 1 répertorie l'ensemble des débits Q imposés par le pousse-seringue dont les valeurs de tension associées sont indiquées dans la colonne 2. Chacune de ces tensions est relativisée par rapport à la tension à taux de cisaillement nul (colonne 3 : Tension relativisée) puis multiplier par le facteur de calibration du rhéomètre pour obtenir la perte de charge le long du canal (colonne 4 : ΔP). Ensuite on calcule σ_w à partir de l'équation 3.16 et $\dot{\gamma}_w$ avec l'équation 3.19. S'agissant de fluides newtoniens $n=1$ et on obtient $\dot{\gamma}_w=\dot{\gamma}_a$ de l'équation 3.18 (colonne 7 du tableau 3.8). La colonne 6 répertorie la viscosité obtenue pour chaque débit imposé.

Plusieurs expériences ont ensuite été réalisées avec chacun des fluides à différentes températures. Cette variation de température implique une variation dans les données théoriques de la viscosité (issues de la littérature pour le dodécane et fourni par le fabricant pour les deux standards de viscosité) qui sont comparées aux données relevées par le dispositif. Ces valeurs théoriques sont représentées par une droite constante sur chacune des figures illustrant les relevés de viscosité du capteur pour chaque expérience.

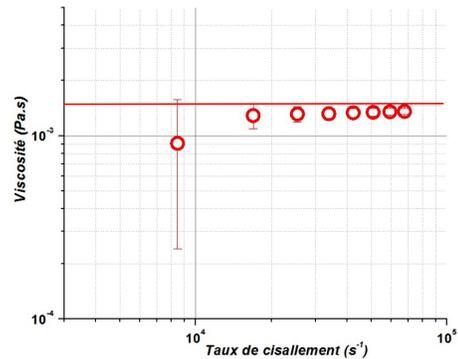
Dodécane

TABLE 3.8 – Expérience avec du dodécane à une température de 22.1°C (avec une viscosité théorique $\eta_{th}=1.425\text{mPa}\cdot\text{s}$).

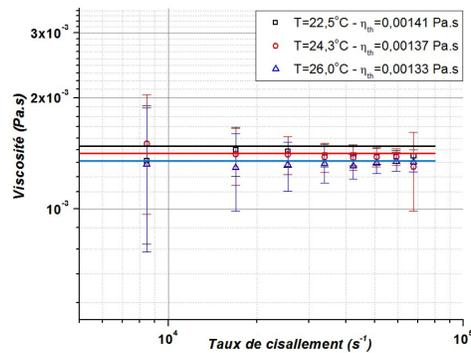
Débits pousse-seringue ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Tension (V)	Tension relativisée (V)	ΔP (Pa)	Débit (m^3/s)	σ_w (Pa)	$\dot{\gamma}_w$ (s^{-1})	Viscosité ($\text{mPa}\cdot\text{s}$)
0	0.479277	0	0	0	none	0	0
100	0.473451	0.005827	2257.205270	$1.67\cdot 10^{-9}$	7.6950	8464.8	0.9091
200	0.462776	0.016502	6392.544663	$3.33\cdot 10^{-9}$	21.7928	16930	1.2873
300	0.454025	0.025253	9782.659890	$5.00\cdot 10^{-9}$	33.3500	25394	1.3134
400	0.445487	0.033790	13090.034653	$6.67\cdot 10^{-9}$	44.6251	33859	1.3180
500	0.436521	0.042757	16563.469512	$8.33\cdot 10^{-9}$	56.4664	42324	1.3342
600	0.427633	0.051645	20006.691751	$1.00\cdot 10^{-9}$	68.2046	50789	1.3430
700	0.418659	0.060619	23483.248746	$1.17\cdot 10^{-9}$	80.0565	59254	1.3512
800	0.409684	0.069593	26959.809578	$1.33\cdot 10^{-9}$	91.9084	67718	1.3573



(a) .



(b) .



(c) .

FIGURE 3.20 – Caractérisation du dodécane à une température de 22°C . **a.** : Contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour le dodécane. **b.** : Viscosité en fonction du taux de cisaillement. **c.** : Courbes de viscosités en fonction du taux de cisaillement du dodécane pour trois températures différentes.

N10

TABLE 3.9 – Expérience avec un standard de viscosité N10 à une température de 21.9°C (avec une viscosité théorique $\eta_{th}=16.48\text{mPa}\cdot\text{s}$).

Débits pousse-seringue ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Tension (V)	Tension relativisée (V)	ΔP (Pa)	Débit (m^3/s)	σ_w (Pa)	$\dot{\gamma}_w$ (s^{-1})	Viscosité ($\text{mPa}\cdot\text{s}$)
0	0.447049	0	0	0	none	0	0
100	0.360459	0.086590	41018.604131	$1.67\cdot 10^{-9}$	139.8362	8464.8	16.5206
200	0.276606	0.170443	80740.372212	$3.33\cdot 10^{-9}$	275.2513	16930	16.2594
300	0.181368	0.265681	125855.380484	$5.00\cdot 10^{-9}$	429.0524	25394	16.8965
400	0.096538	0.350511	166040.031597	$6.67\cdot 10^{-9}$	566.0456	33859	16.7185
500	0.007036	0.440014	208438.062056	$8.33\cdot 10^{-9}$	710.5843	42324	16.7901
600	-0.082865	0.529914	251024.623595	$1.00\cdot 10^{-9}$	855.7658	50789	16.8504
700	-0.170096	0.617146	292346.924245	$1.17\cdot 10^{-9}$	996.6372	59254	16.8208

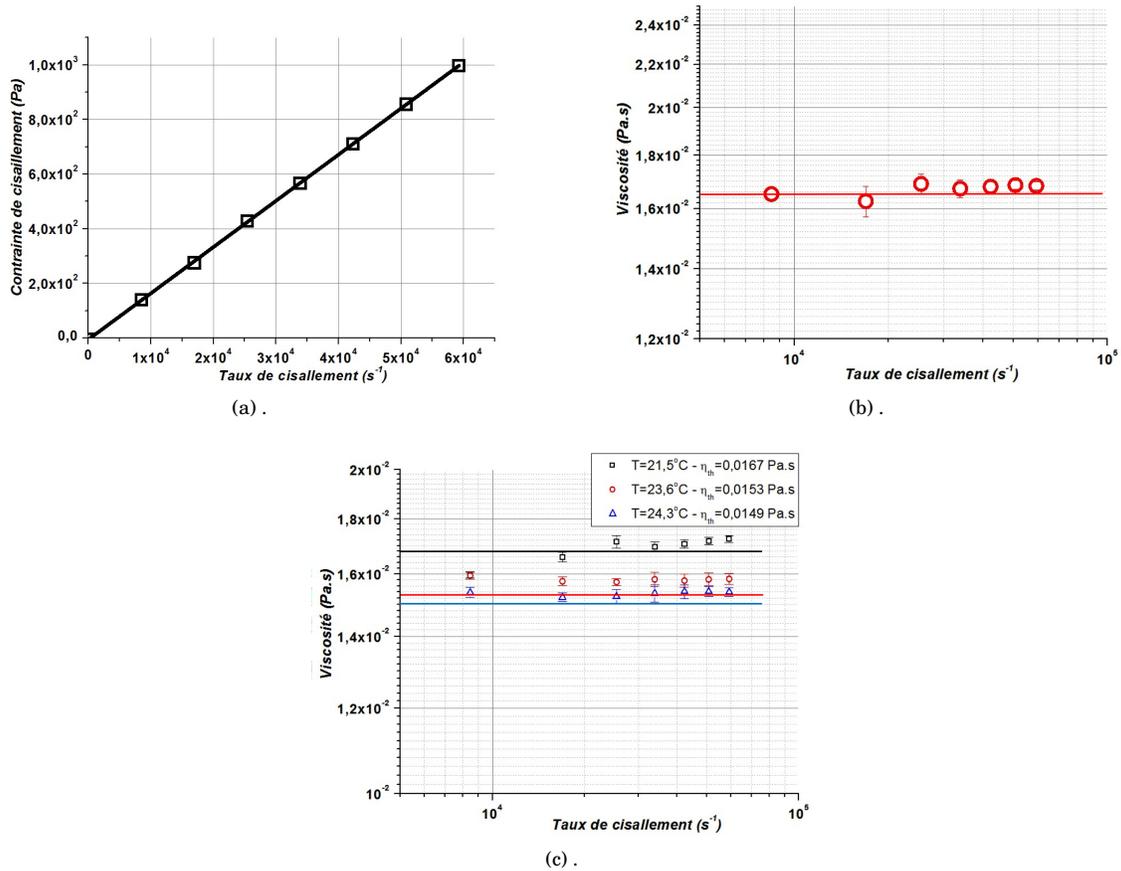
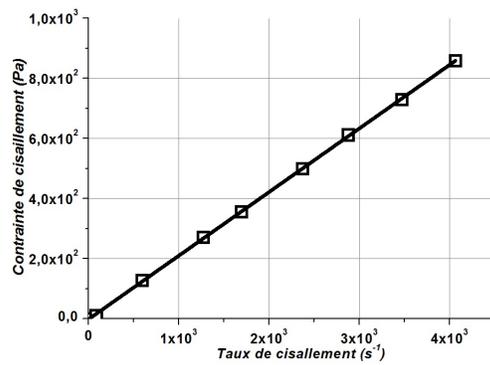


FIGURE 3.21 – Caractérisation du N10 à une température de 21.9°C . **a.** : Contraite de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour le N10. **b.** : Viscosité en fonction du taux de cisaillement. **c.** : Courbes de viscosités en fonction du taux de cisaillement du N10 à températures différents.

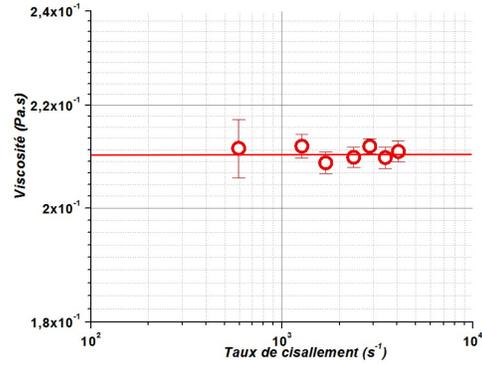
N100

TABLE 3.10 – Expérience avec un standard de viscosité N100 à une température de 24.5°C (avec une viscosité théorique $\eta_{th}=210.84\text{mPa}\cdot\text{s}$).

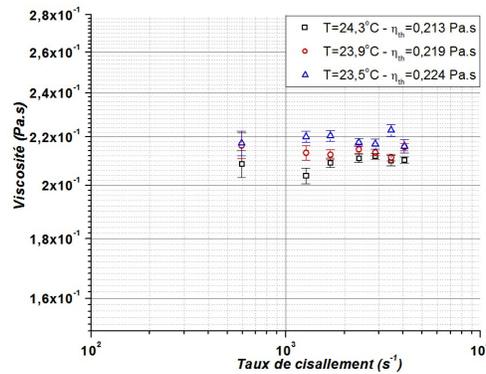
Débit pousse-seringue ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Tension (V)	Tension relativisée (V)	ΔP (Pa)	Débit (m^3/s)	σ_w (Pa)	$\dot{\gamma}_w$ (s^{-1})	Viscosité ($\text{mPa}\cdot\text{s}$)
0	0.486261	0	0	0	none	0	
1	0.486502	0.000315	122.155	$1.67\cdot 10^{-10}$	15.846	84.648	187.207
7	0.475362	0.011455	4437.681	$1.17\cdot 10^{-10}$	123.176	592.54	207.880
15	0.474503	0.012314	4770.480	$2.50\cdot 10^{-10}$	258.301	1269.7	203.432
20	0.399837	0.086981	33695.429	$3.33\cdot 10^{-10}$	353.445	1693.0	208.773
28	0.393232	0.093585	36253.905	$4.67\cdot 10^{-10}$	499.580	2370.1	210.780
34	0.303432	0.183385	71041.637	$5.67\cdot 10^{-10}$	609.164	2878.0	211.656
41	0.290915	0.195902	75890.661	$6.83\cdot 10^{-10}$	728.402	3470.6	209.88
48	0.290875	0.195942	75906.095	$8.00\cdot 10^{-10}$	854.064	4063.1	210.2



(a).



(b).



(c).

FIGURE 3.22 – Caractérisation du N100 à une température de 24.5°C . **a.** : Contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour le N100. **b.** : Viscosité en fonction du taux de cisaillement. **c.** : Courbes de viscosités en fonction du taux de cisaillement du N100 à températures différentes.

Les résultats pour le fluide dodécane à trois températures différentes (figure 3.20c) indique un bon accord entre les viscosités moyennes mesurées et les viscosités attendues ($22.5^{\circ}C : \eta_{exp}=1.398mPa \cdot s - \eta_{th}=1.415mPa \cdot s$; $24.3^{\circ}C : \eta_{exp}=1.391mPa \cdot s - \eta_{th}=1.373mPa \cdot s$; $26.0^{\circ}C : \eta_{exp}=1.321mPa \cdot s - \eta_{th}=1.336mPa \cdot s$). On observe cependant une erreur de mesure de $\eta(\dot{\gamma}_w)$ prononcée à faible taux de cisaillement (de l'ordre de 40%) et qui décroît à mesure que l'on augmente le débit (de l'ordre de 5% pour les forts taux de cisaillement). Cela signifie donc que la résolution du capteur ne permet pas d'observer la contrainte de cisaillement à des débits très faibles, d'où la présence de bruit dans les mesures.

Les mesures de viscosités avec le fluide N10 (figure 3.21c) indiquent là encore un très bon accord entre les valeurs expérimentales et les valeurs théoriques ($21.5^{\circ}C : \eta_{exp}=16.88mPa \cdot s - \eta_{th}=16.76mPa \cdot s$; $23.6^{\circ}C : \eta_{exp}=15.8mPa \cdot s - \eta_{th}=15.35mPa \cdot s$; $24.3^{\circ}C : \eta_{exp}=15.34mPa \cdot s - \eta_{th}=14.92mPa \cdot s$). Les variations sur l'ensemble des valeurs mesurées se situent aux alentours de 1.2%, la viscosité mesurée est dans ce cas indépendante du taux de cisaillement.

Enfin, les courbes d'écoulement obtenues pour le N100 pour trois températures différentes (figure 3.22c) sont en adéquation avec les valeurs théoriques attendues ($23.5^{\circ}C : \eta_{exp}=219.02mPa \cdot s - \eta_{th}=224.93mPa \cdot s$; $23.9^{\circ}C : \eta_{exp}=213.9mPa \cdot s - \eta_{th}=219,17mPa \cdot s$; $24.3^{\circ}C : \eta_{exp}=209.21mPa \cdot s - \eta_{th}=213.57mPa \cdot s$). On retrouve néanmoins le même phénomène observé avec le dodécane, à savoir que la première valeur mesurée (au plus faible taux de cisaillement) comprend beaucoup de bruit (environ 25% d'erreur sur les valeurs mesurées) tandis que cette variation n'est plus que de l'ordre de 0.9% pour le reste des mesures.

3.3.2 Mesures avec des fluides non-newtoniens

Après avoir observé que les courbes d'écoulement obtenues pour les fluides newtoniens sont en accord avec les courbes théoriques, nous procédons à présent à l'étude des fluides non-newtoniens. Plusieurs fluides ont été reportés dans la littérature pour des études de microrhéologie. Parmi eux, des solutions de tensioactif vermiformes [83], des solutions à base de gomme xanthane [84],[52], ou encore du polyisobutylene (PIB) [62].

Dans cette étude, nous utiliserons un liquide rhéofluidifiant SRM2490 PIB (*National Institute of Standards and Technology*). De manière similaire aux travaux de [62], nous diluons le PIB dans de l'hexadécane (25% PIB wt/wt C_{16}), le but étant de valider le modèle Carreau-Yasuda obtenu à l'aide d'un rhéomètre cône-plan (voir équation 3.20) avec le microrhéomètre.

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta_{\infty} + (\eta_0 - \eta_{\infty}) \left[1 + (\beta \cdot \dot{\gamma})^2 \right]^{(n-1)/2} \quad (3.20)$$

avec $\eta_0=126mPa \cdot s$ (la viscosité du mélange à taux de cisaillement nul), $\eta_{\infty}=5.5mPa \cdot s$, $n=0.7$ et $\beta=5.91ms$ (le temps de relaxation du fluide).

L'ensemble de ces paramètres ont été obtenus dans [62] pour une température d'environ $22.5^{\circ}C$. Ce modèle est représenté figure 3.23 et sera notre élément de comparaison avec les résultats de nos mesures.

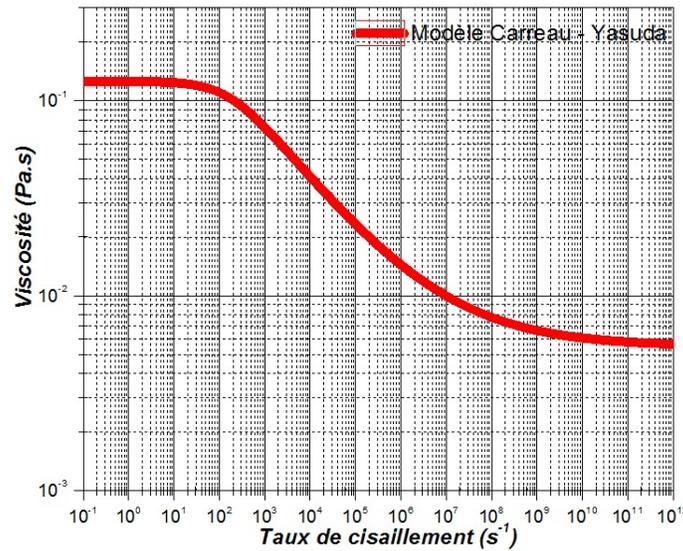


FIGURE 3.23 – Modèle Carreau-Yasuda décrivant l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25% PIB wt/wt C₁₆ pour $T \approx 22.5^\circ C$

De la même façon que pour les expériences avec les fluides newtoniens, nous conservons le même protocole expérimental. Le programme des débits a été écrit de telle façon qu'une large gamme de taux de cisaillement soit parcourue. En effet nous prenons un grand nombre de points de mesures entre 0.1 et 300 $\mu L/min$ ce qui permet de couvrir une plage comprise entre 10 et environ 30000 s^{-1} , nous permettant ainsi de couvrir l'ensemble des valeurs importantes de viscosité de ce fluide. L'acquisition des valeurs se fait de la même manière, en mesurant en premier la tension à débit nul puis ensuite les tensions correspondantes au débits croissants.

Les données nécessaires à la détermination des courbes d'écoulement du fluide lors d'une expérience sont récapitulées dans le tableau 3.11. Les premières étapes du protocole analytique sont identiques à la méthode présentée dans la section 3.2.6 (indiquées dans les cinq premières colonnes du tableau 3.11) : écriture du programme des débits à appliquer au pousse-seringue, relevé à chaque palier de la tension et conversion de la différence de tension en différence de pression à l'aide du coefficient de calibration du rhéomètre.

Les colonnes 6 et 7 représentent respectivement les valeurs de σ_w et de $\dot{\gamma}_a$. Après avoir calculé le logarithme pour chacun des deux paramètres (indiqués dans les colonnes 8 et 9), on trace $\log(\sigma_w)$ contre $\log(\dot{\gamma}_a)$ représenté en figure 3.24a, ce qui permet de déterminer le facteur n (différent de 1 dans ce cas). En appliquant l'équation 3.19 on obtient le taux de cisaillement "vrai" au mur $\dot{\gamma}_w$ (colonne 10). On peut ainsi déterminer la viscosité pour chaque débit dont la valeur est indiquée dans la colonne 11.

La figure 3.24a représente $\log(\sigma_w)(\log(\dot{\gamma}_a))$ qui permet d'obtenir n qui correspond au coefficient directeur de la droite selon la méthode indiquée dans [82] (étape ④ de la procédure). Après avoir déterminé $\dot{\gamma}_w$ (étape ⑥ de la procédure) on peut alors déduire la viscosité (étape ⑦ de la procédure). Les figures 3.24b et 3.24c illustrent respectivement la contrainte de cisaillement σ_w et la viscosité η en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}_w$.

Pour cette expérience réalisée à 22.5°C, nous pouvons constater que la courbe de viscosité (figure 3.24c) se trouve légèrement au dessous du modèle de Carreau-Yasuda à faibles taux de cisaillement. Nous verrons par la suite plusieurs explications pouvant être à l'origine de ce phénomène.

TABLE 3.11 – Expérience avec le mélange 1/4PIB wt/wt C₁₆ à une température de 22.5°C

Débit ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Tension (V)	Tension relativisée (V)	ΔP (Pa)	Débit (m^3/s)	σ_w (N/m^2)	$\dot{\gamma}_a$ (s^{-1})	$\log(\sigma_w)$	$\log(\dot{\gamma}_a)$	$\dot{\gamma}_w$ (s^{-1})	Viscosité $\text{mPa}\cdot\text{s}$
0	0.4561	0	0	0	0	0	none	none	0	none
0,1	0.4553	0.00078	370.67	$1.67\cdot 10^{-12}$	1.2637	8.4648	0.101	0,927	9.19	0,13738
0,3	0.4545	0.00160	759.59	$5.00\cdot 10^{-12}$	2.5895	25.394	0.413	1,404	27.59	0,09384
0,5	0.4533	0.00277	1316.43	$8.33\cdot 10^{-12}$	4.4879	42.324	0.652	1,626	45.98	0,09758
0,7	0.4521	0.00397	1880.62	$1.17\cdot 10^{-11}$	6.4112	59.254	0.806	1,772	64.38	0,09957
1	0.4504	0.00562	2666.26	$1.67\cdot 10^{-11}$	9.0895	84.648	0.958	1,927	91.97	0,09882
2	0.4454	0.01071	5075.78	$3.33\cdot 10^{-11}$	17.304	169.30	1.238	2,228	183.95	0,09406
3	0.4405	0.01557	7378.95	$5.00\cdot 10^{-11}$	25.156	253.94	1.400	2,404	275.93	0,09116
4	0.4362	0.01982	9392.21	$6.67\cdot 10^{-11}$	32.019	338.59	1.505	2,529	367.91	0,08702
5	0.4317	0.02436	11542.60	$8.33\cdot 10^{-11}$	39.350	423.24	1.594	2,626	459.89	0,08556
6	0.4279	0.02821	13365.19	$1.00\cdot 10^{-10}$	45.563	507.89	1.658	2,705	551.86	0,08256
7	0.4246	0.03151	14928.43	$1.17\cdot 10^{-10}$	50.892	592.54	1.706	2,772	643.84	0,07904
8	0.4214	0.03465	16415.64	$1.33\cdot 10^{-10}$	55.962	677.18	1.747	2,830	735.82	0,07605
9	0.4177	0.03837	18177.12	$1.50\cdot 10^{-10}$	61.967	761.83	1.792	2,881	827.80	0,07485
10	0.4141	0.04199	19893.13	$1.67\cdot 10^{-10}$	67.817	846.48	1.831	2,927	919.78	0,07373
13	0.4052	0.05091	24117.89	$2.17\cdot 10^{-10}$	82.220	1100.4	1.914	3,041	1195.71	0,06876
15	0.3987	0.05740	27190.83	$2.50\cdot 10^{-10}$	92.696	1269.7	1.967	3,103	1379.67	0,06718
17	0.3935	0.06255	29631.38	$2.83\cdot 10^{-10}$	101.02	1439.0	2.004	3,158	1563.62	0,06460
20	0.3854	0.07064	33466.99	$3.33\cdot 10^{-10}$	114.09	1693.0	2.057	3,228	1839.56	0,06202
30	0.3607	0.09534	45165.21	$5.00\cdot 10^{-10}$	153.97	2539.4	2.187	3,404	2759.34	0,05580
40	0.3407	0.11540	54666.84	$6.67\cdot 10^{-10}$	186.36	3385.9	2.270	3,529	3679.12	0,05065
50	0.3179	0.13819	65465.25	$8.33\cdot 10^{-10}$	223.18	4232.4	2.348	3,626	4598.90	0,04852
60	0.2987	0.15738	74555.24	$1.00\cdot 10^{-9}$	254.17	5078.9	2.405	3,705	5518.68	0,04605
70	0.2811	0.17496	82882.55	$1.17\cdot 10^{-9}$	282.55	5925.4	2.451	3,772	6438.46	0,04388
80	0.2630	0.19306	91454.06	$1.33\cdot 10^{-9}$	311.78	6771.8	2.493	3,830	7358.24	0,04237
90	0.2488	0.20727	98187.58	$1.50\cdot 10^{-9}$	334.73	7618.3	2.524	3,881	8278.02	0,04043
100	0.2284	0.22768	107857.14	$1.67\cdot 10^{-9}$	367.69	8464.8	2.565	3,927	9197.81	0,03997
150	0.1515	0.30457	144278.18	$2.50\cdot 10^{-9}$	491.86	12697	2.691	4,103	13796.71	0,03565
200	0.0820	0.37408	177206.33	$3.33\cdot 10^{-9}$	604.11	16930	2.781	4,228	18395.62	0,03284
250	0.0156	0.44042	208632.12	$4.17\cdot 10^{-9}$	711.25	21162	2.852	4,325	22994.52	0,03093
300	-0.04836	0.50447	238975.24	$5.50\cdot 10^{-9}$	814.69	25394	2.910	4,404	27593.43	0,02952

Cette partie consacrée au développement du capteur étant cruciale dans la réalisation du micro-système pour la caractérisation des fluides complexes, il nous a paru indispensable de tester pleinement la précision de ce capteur avec la solution de PIB et d'hexadécane. Pour cette raison, nous avons choisi de tester deux dispositifs identiques au cours de cette étude (tous deux ayant été conçus selon le même procédé de fabrication). Nous avons effectué dans un premier temps la calibration des deux capteurs afin de déterminer leur coefficient de calibration respectif. Les programmes de débits et le protocole expérimental sont restés en tout point identiques ainsi que la méthode de calcul pour la correction de Weissenberg - Rabinowitsch - Mooney. L'ensemble des courbes d'écoulement pour les deux dispositifs à différentes températures est représenté figure en 3.25 et 3.26.

Il est intéressant de constater que pour deux expériences distinctes réalisées à une même température (figure 3.25a et 3.25b), la mesure de viscosité est quasiment identique illustrant la reproductibilité des mesures et la robustesse du dispositif. Par ailleurs, les mesures effectuées à température en deçà de 23°C (telle que pour la figure 3.25c), on constate que le décalage entre les courbes diminue comme prévu entre les résultats expérimentaux et le modèle de référence.

Quant aux expériences réalisées avec le second dispositif (Rhéomètre2), la tendance qui se dégage des résultats est similaire aux précédentes remarques. Le coefficient de calibration de celui-ci est de $4.7981 \cdot 10^5$, et pour une expérience réalisée à une température de 22.4°C (figure 3.26a), on observe que les deux courbes, expérimentale et modèle, sont parfaitement superposées.

Sur les différents graphiques de mesures, on peut constater que chacune des premières valeurs (cor-

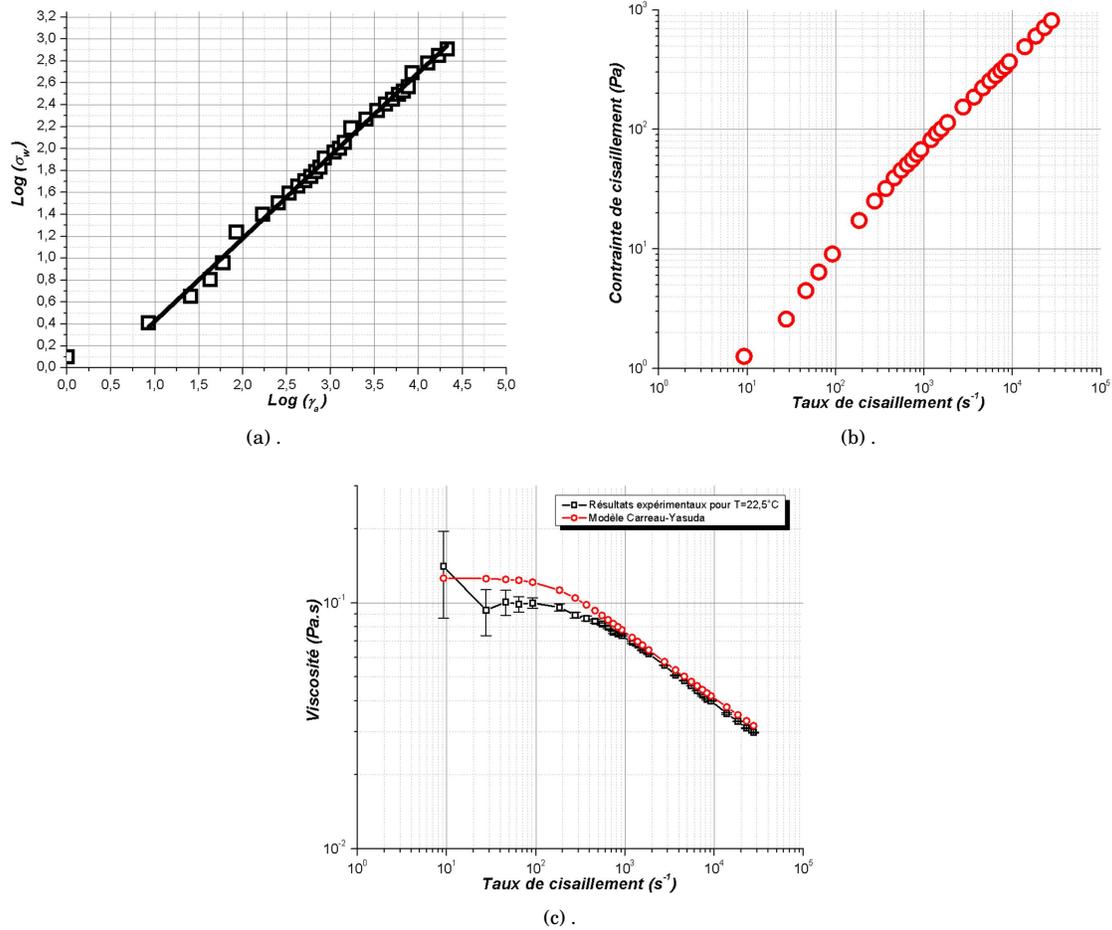


FIGURE 3.24 – Analyse du comportement du mélange 25%PIB wt/wt C₁₆ à une température de 22.5^oC. **a.** : Détermination du n par le coefficient directeur de la droite. Dans le cas présent $n=0.7522$. **b.** : Evolution de la contrainte de cisaillement aux murs en fonction du taux de cisaillement au mur pour une température de 22.5^oC. **c.** : Tendence de la viscosité en fonction du taux de cisaillement - Expérience et modèle pour $T=22.5^{\circ}\text{C}$.

respondant au plus petit taux de cisaillement) est généralement très bruitée. L'explication la plus plausible reste la même que pour les mesures réalisées avec les fluides newtoniens, à savoir que la contrainte appliquée au fluide est trop faible pour qu'elle soit détectée par le capteur (résolution trop faible) ce qui laisse apparaître beaucoup de bruit dans les données.

Cette forte variation de la valeur de la tension à débit nul a donc un fort impact sur notre protocole calculatoire. En effet l'ensemble des valeurs relevé par la suite est normalisée par rapport à cette tension initiale puis multiplié par le coefficient de calibration du rhéomètre pour pouvoir obtenir la contrainte de cisaillement à chaque palier de débit. Malgré le moyennage appliqué sur les derniers points, le bruit très présent dans les premières mesures à faible débit fausse la valeur de la contrainte de cisaillement à chaque palier, ce qui affecte le calcul des valeurs de viscosités, notamment sur les premiers points (phénomène visible sur les figures 3.24c, 3.25, 3.26).

Toutefois, ce phénomène n'apparaît pas de façon répétée pour chaque expérience, ce qui nous a permis d'obtenir des courbes d'écoulement pour les deux dispositifs fiables et pertinentes au vu de la concordance avec le modèle Carreau-Yasuda (figures 3.25 et 3.26).

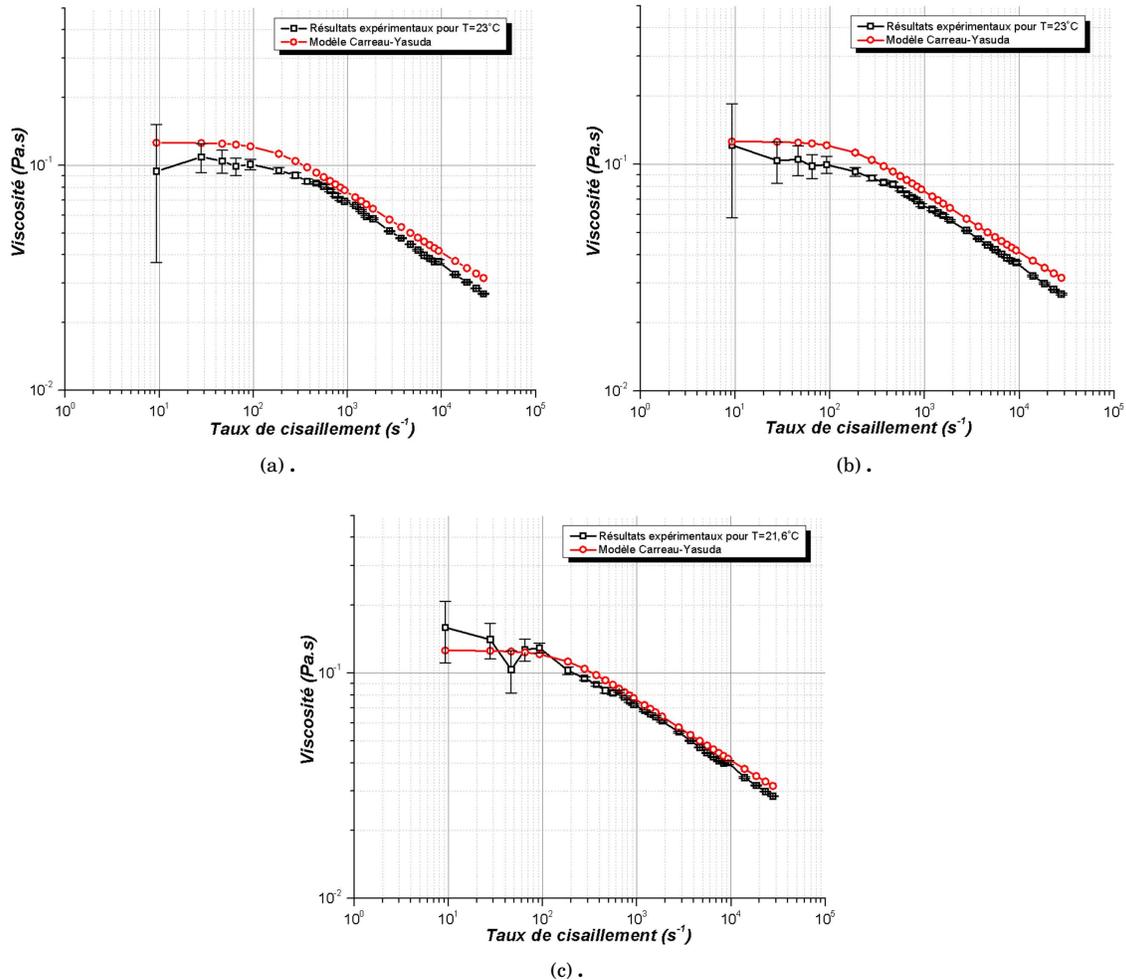


FIGURE 3.25 – Evolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C₁₆ avec le Rhéomètre1. **a.** et **b.** : Expériences réalisées à une température de 23°C. **c.** : Expérience réalisée à 21.6°C.

Cependant, et en vue de pallier à ce manque d'information sensible, l'utilisation d'un modèle mathématique permettrait d'approximer à tout instant la valeur de la tension mesurée et ce même à faible taux de cisaillement. Pour ce faire, on se propose de changer le protocole expérimental au profit d'un système à pression contrôlée, lequel nous permettant de se soustraire du pousse-seringue, et ainsi d'envoyer en continu le fluide. Cette méthode d'envoi contrôlé du fluide servira à extraire un modèle mathématique de l'évolution de la viscosité en fonction du débit afin de corriger les erreurs de mesures du capteur à faible taux de cisaillement.

3.4 Mesures à pression contrôlée

3.4.1 Modification du protocole expérimental

L'objectif de cette méthode est de disposer d'un nombre de points de mesure suffisamment élevé pour pouvoir extrapoler les courbes de tension et de débit à partir d'un modèle mathématique. Ce modèle nous permettra alors d'approximer les valeurs critiques de la contrainte de cisaillement à

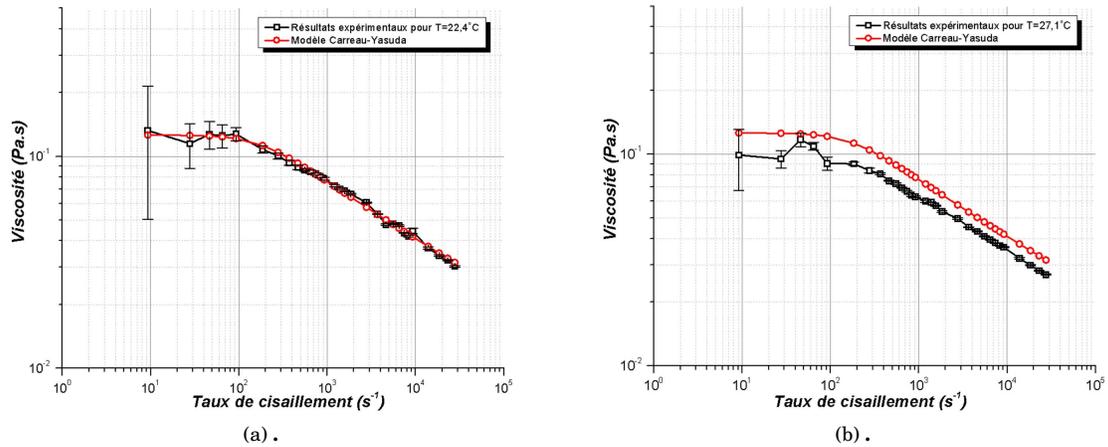


FIGURE 3.26 – Evolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C_{16} avec le Rhéomètre2. **a.** : Expérience réalisée à une température de $22.4^{\circ}C$. **b.** : Expérience réalisée à une température de $27.1^{\circ}C$.

taux de cisaillement très bas qui ne peuvent être lus directement à partir du dispositif à cause de sa résolution trop faible et du bruit généré par le pousse seringue dans cette gamme de débits.

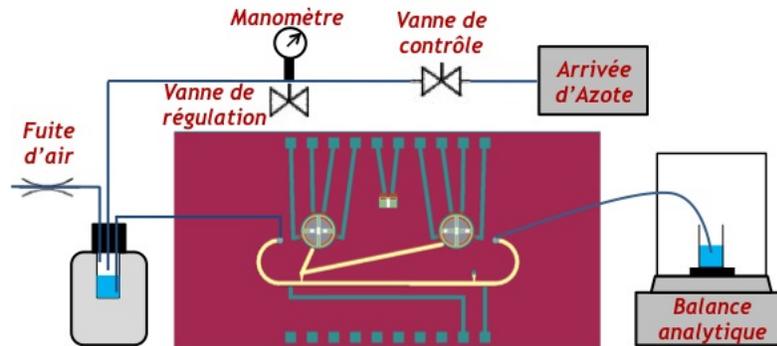


FIGURE 3.27 – Protocole expérimental pour la mesure à pression contrôlée.

Le gaz est envoyé à pression contrôlée ($5bar$) dans une bouteille de verre (prévue pour résister à de fortes pressions) qui a été remplie de PDMS dans lequel est placée une fiole de verre destinée à contenir le fluide à tester. La fiole n'étant jamais rempli au maximum de liquide, le volume de gaz restant se comprime sous l'effet de la pression envoyant le fluide dans le capillaire de sortie. Connecté directement au rhéomètre, la jauge de pression mesure alors la tension correspondant à son état de déflexion maximale relative à la pression imposée. Lorsque la pression est coupée (via la vanne de contrôle), la pression dans le système va diminuer progressivement jusqu'à revenir à la pression atmosphérique. Le coussin d'air va alors reprendre son volume initial en poussant le fluide à un débit relatif à la pression interne de la fiole. Pour accélérer cette chute de pression, une fuite a été introduite au niveau de la bouteille de verre, ce qui a pour effet de diminuer le temps nécessaire au système pour retourner à la pression atmosphérique, réduisant également la quantité de fluide nécessaire pour atteindre cette condition. La tension relative à la chute de pression mesurée par la jauge du rhéomètre est alors enregistrée jusqu'à ce que le système soit revenu à un état stable. La mesure du débit du fluide s'obtient grâce à une balance analytique (*Adventurer Pro, OHAUS*) positionnée en sortie du rhéomètre, laquelle permet de déterminer le débit massique du fluide au

cours de l'expérience. Elle est gérée via une extension de l'interface de contrôle expérimentale entièrement dédiée à la mesure du poids (par communication série) et à la mesure de tension de la jauge.

La prise de mesure gérée par la nouvelle interface recueille comme la précédente les données pour les stocker dans un fichier texte qui sera analysé ultérieurement.

La principale différence se trouve donc dans l'interprétation des mesures où il ne s'agit plus de moyenniser les valeurs relevées, mais de travailler avec le maximum de points de mesure. Le temps requis par le programme de gestion de l'interface pour enregistrer les données point par point est important, est donc le plus faible possible pour relever le maximum de données. Le temps nécessaire à chaque boucle du programme pour traiter chaque donnée puis la sauvegarder est de l'ordre de 240ms . Après avoir ajusté la fuite d'air, pour réduire le temps de décompression dans le bouteille de verre, nous observons un temps de mesure complète de l'ordre de 600s par expérience ce qui correspond à environ 3000 points de mesures (nettement supérieurs à la dizaine obtenue avec le pousse seringue).

3.4.2 Modèle mathématique d'approximation des courbes expérimentales.

La séquence d'enregistrement commence avant d'appliquer la pression (jauge au repos) ce qui permet de relever la tension à taux de cisaillement nul. Le gaz est ensuite injecté à la pression maximale (5bar), puis une fois que la membrane est stable (aux environs de 50s), on coupe l'arrivée d'azote à l'aide de la vanne de contrôle. Le débit va alors décroître jusqu'à ce que le volume de gaz contenu dans la fiole soit à nouveau à pression atmosphérique (débit proche de 0).

L'acquisition des données se fait au moment où la tension relevée indique que la membrane a atteint sa déformation maximale relative à la pression imposée (voir figure 3.28). Les premières données ne seront donc pas prises en considération pour établir la fonction d'approximation, seule compte la période où le débit est maximal jusqu'à ce qu'il soit quasiment nul.

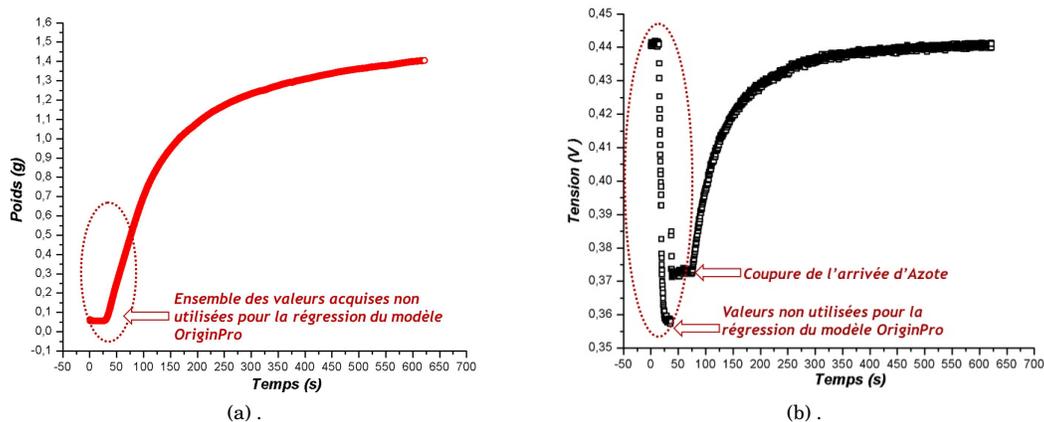


FIGURE 3.28 – Observation des valeurs non utilisées pour la régression. **a.** : Mesure du poids en fonction du temps. **b.** : Mesure de la tension en fonction du temps.

Sur un étude quantitative menée pour déterminer un modèle en accord avec chacune des courbes de tension et de poids, nous avons identifié la fonction 3.21 comme étant celle qui avait le meilleur coefficient de régression. Le modèle choisi est donc une somme de deux exponentielles de la forme :

$$y(t) = y_0 + A_1 \exp\left(-\frac{t}{t_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{t_2}\right) \quad (3.21)$$

avec y_0 la valeur finale, A_1 et A_2 les amplitudes de chacune des exponentielles, et t_1 et t_2 les constantes de temps. Ce modèle mathématique prédit parfaitement le comportement de nos deux courbes (figure 3.29). On notera alors la mesure de la différence de tension la fonction $V(t)$ s'exprimant par :

$$V(t) = V_0 + V_1 \exp\left(-\frac{t}{t_1}\right) + V_2 \exp\left(-\frac{t}{t_2}\right) \quad (3.22)$$

avec V_0 la valeur de la tension à taux de cisaillement nul, V_1 et V_2 les amplitudes de chacune des exponentielles, et t_1 et t_2 les constantes de temps.

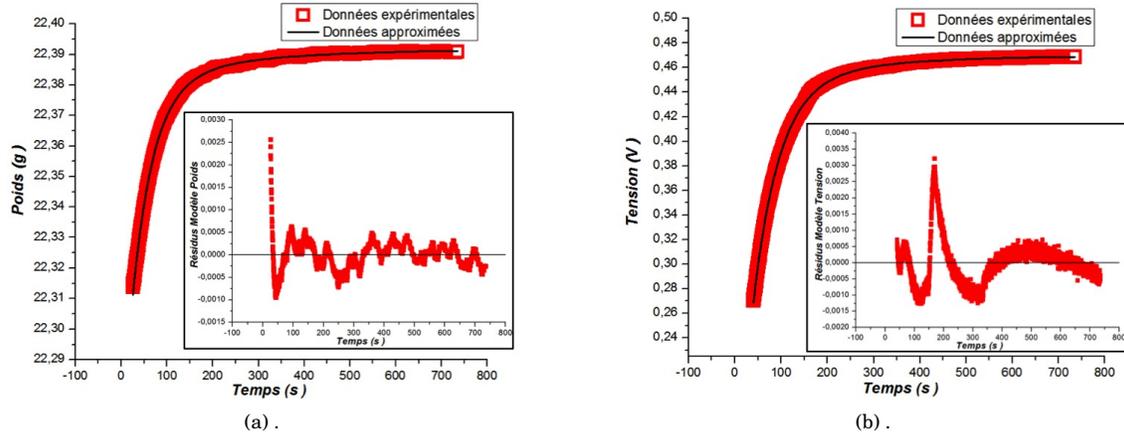


FIGURE 3.29 – Approximation des données avec le modèle mathématique. **a.** : Mesure du poids en fonction du temps avec la régression ($R^2 = 0.99955$) et résidus du modèle pour le poids. **b.** : Mesure de la tension en fonction du temps avec la régression ($R^2 = 0.99964$) et résidus du modèle pour la tension.

Le modèle de l'équation 3.21 approxime également le poids en fonction du temps. En dérivant cette équation, on obtient alors le débit massique (noté $\Phi_{massique}(t)$) du fluide au cours de l'expérience que l'on définit par :

$$\frac{dy}{dt} = \Phi_{massique}(t) = -\frac{M_1}{t_3} \exp\left(-\frac{t}{t_3}\right) - \frac{M_2}{t_4} \exp\left(-\frac{t}{t_4}\right) \quad (3.23)$$

avec M_1 et M_2 les amplitudes de chacune des exponentielles, et t_3 et t_4 les constantes de temps.

Chacune des valeurs obtenues est ensuite convertie en débit volumique à l'aide de la densité du mélange, mesurée expérimentalement et ayant pour valeur $\rho_{25\%PIBwt/wtC_{16}} = 0.7919 \text{ g/mL}$. En appliquant le protocole calculatoire décrit en section 3.2.6, on peut alors déterminer en tous les points de mesure la viscosité du mélange.

On rappelle que dans cette procédure la viscosité est obtenue à partir de la relation :

$$\eta = \frac{\sigma_w}{\dot{\gamma}_w}$$

avec $\sigma_w \sim \Delta P$ et $\dot{\gamma}_w \sim Q$, où $\Delta P = V(t) \cdot \alpha$ (avec α qui dépend des paramètres géométriques du canal H , W et L ainsi que du coefficient de calibration du rhéomètre) et $Q = \Phi_{massique}(t) \cdot \beta$ (avec β qui dépend également des paramètres géométriques du canal W , H , a^* , b^* et de f^* ainsi que de la

densité volumique du fluide).

En remplaçant tous les paramètres géométriques et constants par le paramètre K , on peut alors écrire que la viscosité s'obtient à partir de la relation suivante :

$$\eta = \frac{V(t)}{\Phi_{massique}(t)} \cdot K$$

Or pour les deux approximations (poids et tension), les constantes de temps t_2 et t_4 de chaque exponentielle n'ont pas la même valeur. Cela induit donc une erreur d'approximation de la viscosité η lorsque t tend vers $+\infty$, qui doit être constante pour ce fluide. Cependant, si on impose manuellement la valeur de t_4 à t_2 , cela permet de fixer la convergence du ratio des deux fonctions vers une valeur constante de la viscosité lorsque t tend vers $+\infty$.

L'ensemble de cette procédure expérimentale et calculatoire permet donc de bénéficier d'un nombre de points de mesure très largement supérieur à celui obtenu avec le protocole à débit contrôlé. Les courbes de tension et de poids sont approximées par un modèle mathématique qui nous renseigne sur la valeur de la contrainte de cisaillement dans une gamme de débits ne pouvant être mesurée avec la précédente méthode à cause de la résolution trop faible du capteur et du bruit introduit dans la mesure par le pousse-seringue.

3.4.3 Mesures avec des fluides newtoniens

Dans cette section, nous concentrons nos expériences uniquement sur un seul fluide newtonien, le dodécane, en utilisant la nouvelle procédure de mesure décrite précédemment. Les données seront ensuite exploitées avec la méthode décrite dans la section 3.2.6. Chaque mesure comprenant plusieurs milliers de points, nous présenterons donc uniquement les courbes de viscosité en fonction du taux de cisaillement afin de valider le modèle mathématique.

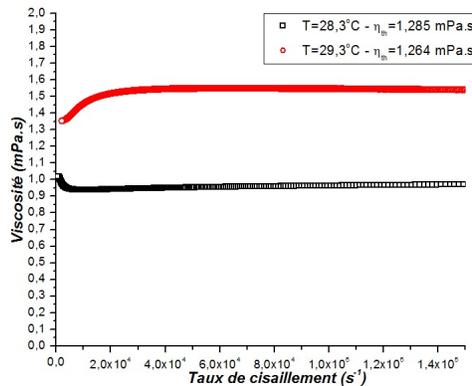


FIGURE 3.30 – Ensemble des courbes de régression pour chacune des mesures effectuées avec du dodécane à différentes températures.

L'instant où l'arrivée de gaz est fermée correspond à un instant critique dans le choix des valeurs à retirer, car d'une suppression de données à l'autre, les paramètres des fonctions de régression du poids et de la tension se trouvent totalement modifiés. Cela induit donc des valeurs erronées dans la détermination du taux et de la contrainte de cisaillement, menant à une mauvaise estimation de la viscosité. Il n'est pourtant pas impossible de constater que même pour des approximations avec un $R^2 > 0.99$ pour les courbes de poids et de tension, que l'on obtienne une estimation de la viscosité avec un écart relatif de l'ordre de 15 et 35% pour les deux droites en figure 3.30.

Cela étant, nous pouvons constater que notre modèle mathématique nous permet d'estimer de manière fidèle le comportement de la viscosité pour ce fluide, avec une viscosité moyenne proche de la valeur théorique. Cette constatation nous encourage donc à tester cette méthode de caractérisation avec le mélange d'hexadécane et de PIB.

3.4.4 Mesures avec des fluides non-newtoniens

Dans cette section dédiée à la validation du nouveau protocole expérimental avec le mélange 25%PIB wt/wt C_{16} , nous utilisons la méthode décrite dans la section 3.2.6 pour recueillir et traiter les données afin de déterminer les courbes d'écoulement du mélange.

Nous allons ici réaliser une série de mesures à différentes températures afin de valider la véracité d'une part des mesures fournies par le rhéomètre avec cette nouvelle méthode d'envoi à pression contrôlée, et d'autre part du modèle mathématique défini précédemment.

Pour une expérience réalisée à une température de $24.0^{\circ}C$, nous obtenons les données régressées de la contrainte de cisaillement au mur en fonction du taux de cisaillement utilisées ensuite pour la détermination du paramètre n (figure 3.31) :

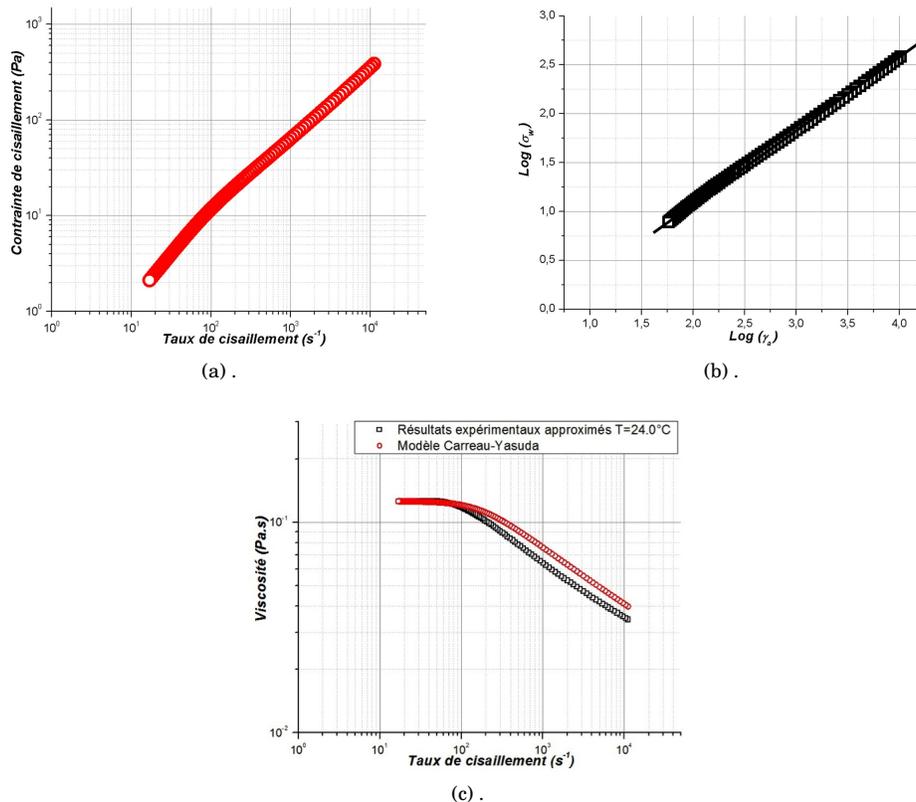


FIGURE 3.31 – Ensemble des données nécessaires à la détermination de la viscosité. **a.** : Evolution de la contrainte de cisaillement au mur en fonction du du taux de cisaillement au mur pour une température de $24.0^{\circ}C$. **b.** : Détermination du paramètre n ($n=0,7578$). **c.** : Evolution de la viscosité du mélange 25%PIB wt/wt C_{16} en fonction du taux de cisaillement avec les valeurs expérimentales approximées avec le modèle mathématique pour une température de $24.0^{\circ}C$.

Au vu de la figure 3.31c, nous pouvons constater que la tendance de la viscosité obtenue à l'aide du modèle mathématique est quasiment identique à celle du modèle de Carreau-Yasuda sur une même plage de taux de cisaillement. En comparant la courbe d'écoulement obtenue pour cette expérience avec celle obtenue par la méthode de débit contrôlé à une température similaire (figure 3.25c), nous obtenons une courbe semblable sans le bruit de mesure sur les premiers points à faibles taux de cisaillement. L'efficacité de ce modèle (équation 3.21) se révèle donc pertinent dans la détermination de la valeur de la viscosité lorsque le taux de cisaillement tend vers 0.

Pour différentes températures la mesure de viscosité du fluide approximée se révèle en adéquation avec la tendance attendue. On constate en effet une variation de la viscosité du mélange relative à la température sur l'ensemble des expériences en figure 3.32, démontrant que le modèle permet reflète de manière pertinente les données issues du capteur. On rappelle que le modèle de Carreau-Yasuda (représenté sur chaque figure) a été obtenu pour une température de 22.5°C . Les données expérimentales tiennent quant à elles compte de la température variable, expliquant ainsi l'écart entre les deux courbes pour chaque expérience.

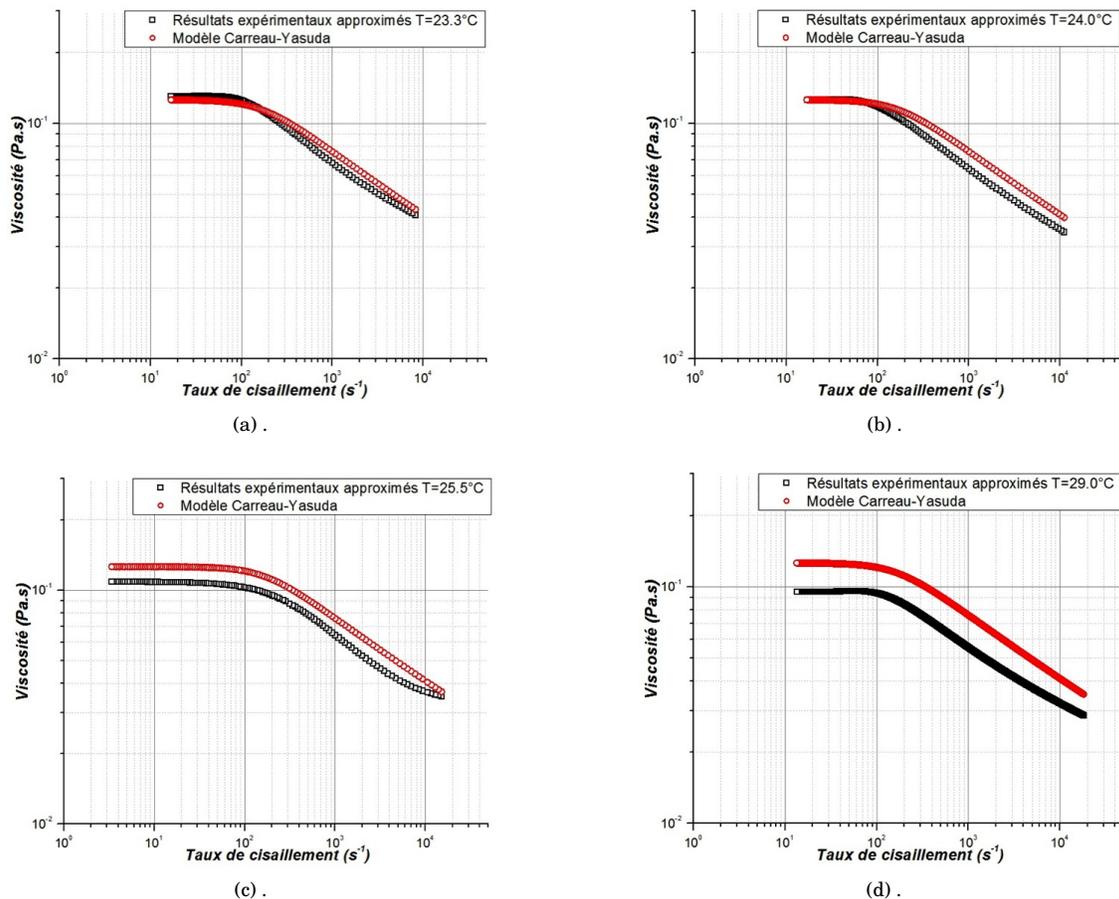


FIGURE 3.32 – Evolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C₁₆ à différentes températures. **a.** : Expérience réalisée à 23.3°C avec $n=0.776$. **b.** : Expérience réalisée à 24.0°C avec $n=0.7578$. **c.** : Expérience réalisée à 25.5°C avec $n=0.8378$. **d.** : Expérience réalisée à 29.0°C avec $n=0.7684$.

Le modèle de Carreau-Yasuda a donc été correctement vérifié pour le mélange 25%PIB wt/wt C₁₆ par les mesures réalisées par le microrhéomètre. Force est de constater que grâce à ce dispositif et

au modèle mathématique défini précédemment, nous sommes non seulement capable de prédire le comportement de la viscosité en fonction de la température, mais également de se soustraire des erreurs de mesures induites par la résolution du capteur à très faibles taux de cisaillement lors des mesures réalisées à débit contrôlé.

De plus, nous avons constaté que l'utilisation de la correction de Weissenberg - Rabinowitsch - Mooney s'applique à l'ensemble de la gamme de pression imposé par le système expérimental de pression contrôlée, permettant de considérer une gamme de taux de cisaillement plus large qu'avec le système seringue-seringue.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté nos travaux en matière de conception, réalisation et caractérisation d'un microrhéomètre utilisant la technologie MEMS basé sur une mesure de pression différentielle le long d'un canal rectangulaire. Nous avons également présenté l'ensemble des dispositifs utilisés pour recueillir, transformer et analyser les données issues de ce capteur. Nous avons démontré l'importance des protocoles à respecter avant l'utilisation d'un nouveau dispositif : le pré-remplissage et la détermination d'un facteur de calibration. Ce facteur est crucial pour la conversion de la tension différentielle délivrée par la jauge piezorésistive en différence de pression, afin d'obtenir les courbes correctes d'écoulement des fluides.

Il a également été montré au cours de cette étude que ce dispositif possède de nombreux avantages en comparaison à des rhéomètres classiques, en grande partie grâce à sa géométrie particulière et à ses dimensions réduites : faible quantité de fluide par série d'expérience environ 2 à 3mL, la possibilité d'atteindre des taux de cisaillement proche de $10^5 s^{-1}$, pas de phénomènes limitant tels que la force centrifuge (qui en raison des forces normales propulsent le fluide hors de la cellule) ou l'inertie (où dans ce cas le terme inertiel devient alors prépondérant au terme visqueux et le nombre de Reynolds $Re > 2000$). Le volume de fluide requis pour chaque expérience est proportionnel au nombre total de mesure, ainsi il est possible de réduire le volume total en diminuant le nombre de points de mesures par débit ce qui n'est pas le cas des rhéomètres classiques.

La différence de pression relative mesurée par le transducteur MEMS et le contrôle de la vitesse d'écoulement du fluide nous ont permis de déterminer les courbes d'écoulement pour des fluides newtoniens et non-newtoniens. Ces mesures ont été réalisées par deux techniques d'envoi contrôlé du fluide. La première par un pousse-seringue (débit contrôlé) qui nous a permis de discrétiser la courbe d'écoulement de ces fluides, a révélé des résultats en adéquation avec les valeurs attendues. Une erreur moyenne de la viscosité pour les fluides newtoniens a été mesurée à environ 2% dans les mesures à fort taux de cisaillement. Cependant, nous avons pu observer que pour les faibles taux de cisaillement, l'erreur de mesure est de l'ordre de 40%, indiquant très clairement une résolution du capteur trop faible pour pouvoir détecter les contraintes appliquées au fluide à très faibles débits, et une source de bruit additionnelle générée par le pousse-seringue à très faibles débits.

Afin de corriger ces défauts, nous avons mis en place une nouvelle approche expérimentale gérée par une nouvelle interface de contrôle, qui consiste à injecter le fluide à l'aide d'un système sous pression (pression contrôlée) et dont le débit est mesuré à l'aide d'une balance analytique. Ce protocole nous a amené à utiliser un modèle mathématique permettant d'approximer la tendance des courbes de poids et de tension mesurées en continu, toutes deux étant utilisées pour déterminer respectivement le taux et la contrainte de cisaillement. Cette méthode s'avère beaucoup plus intéressante que la précédente car celle-ci fournit davantage d'informations sur le comportement du fluide lorsqu'il est soumis à de très faibles contraintes, permettant ainsi d'obtenir la courbe d'écoulement du fluide sur une plus large gamme.

Au final, nous avons démontré l'efficacité de ce microrhéomètre basé sur un transducteur MEMS pour la mesure de la viscosité dans une gamme de débits balayant un large éventail de taux de cisaillement pour des fluides newtoniens et non-newtoniens. Afin d'approfondir son champ d'application, nous envisageons à présent de le soumettre à la mesure de viscosité variable d'un mélange eau DI-glycérol réalisé à partir d'un micromélangeur.

APPLICATION À L'ÉTUDE DE LA VISCOSITÉ D'UN MÉLANGE

Sommaire

4.1	Introduction	110
4.2	Fabrication du micromélangeur	110
4.3	Principe de fonctionnement du mélangeur	112
4.4	Mesure d'efficacité du mélange	113
4.4.1	Protocole expérimental	113
4.4.2	Mesures de calibration	114
4.4.3	Efficacité du micromélangeur.	114
4.4.4	Solutions à base de glycérol.	116
4.5	Association du mélangeur et du rhéomètre - Mesures de viscosités variables	129
4.5.1	Mesures à débits contrôlés.	129
4.5.2	Mesures à pression contrôlée.	132
4.6	Conclusion	133

4.1 Introduction

A l'heure actuelle, il n'existe pas encore de modèle permettant de prédire avec exactitude la viscosité d'un mélange de deux fluides. Plusieurs études ont permis de décrire des modèles semi-empiriques dont la plupart est basée sur des interpolations souvent limitées et fastidieuses [85]. Par ailleurs, les moyens typiquement employés pour réaliser des mélanges pour les études de viscosité nécessitent des quantités de fluide élevées (ce qui peut être coûteux) et un travail de laboratoire assez minutieux.

L'utilisation de systèmes microfluidiques présente l'avantage de ne nécessiter que d'un volume de fluide très réduit pour réaliser des mélanges (voir section 1.4). Les temps de mélange sont réduits de par la taille miniaturisée des dispositifs où les longueurs caractéristiques pour effectuer un mélange sont à l'échelle du μm . Grâce aux techniques de fabrication, il est possible de concevoir des mélangeurs dont les structures confinées permettent d'avoir un écoulement chaotique sans apport d'énergie extérieure et d'obtenir un mélange quasi parfait très rapidement.

Dans ce chapitre nous proposons un système de mesure dans lequel nous utilisons un micromélangeur pour générer un mélange de deux fluides à différentes concentrations dont la viscosité est mesurée par le rhéomètre. L'union de ces deux dispositifs permet alors de connaître instantanément la viscosité du mélange à différentes concentrations. Notre choix en terme de fluide visqueux s'est porté sur le glycérol qui représente à aujourd'hui l'un des liquides les plus versatiles et les plus employés dans le milieu académique et industriel. Il représente en effet un outil très utilisé dans la modélisation mathématique de la viscosité d'un mélange de deux fluides à différentes concentrations et à différentes températures [85] et son usage est très prononcé dans les secteurs alimentaire (stabilisant d'émulsions comme la mayonnaise ou le ketchup), pharmaceutique (sirops), cosmétique (crèmes pour le corps) et est également utilisé dans des mélanges eau-glycérol comme antigel pour les automobiles.

4.2 Fabrication du micromélangeur

Le micromélangeur a été réalisé au sein du département SMM de l'ESIEE Paris dans les mêmes conditions que les autres dispositifs présentés dans ce manuscrit. La première étape de fabrication consiste à graver dans une plaque de silicium ($400\mu\text{m}$) sur une profondeur de $20\mu\text{m}$ les canaux d'entrée-sortie des fluides, les canaux inférieurs des cellules de laminage ainsi que les canaux reliant chaque cellule. Une plaque de verre ($300\mu\text{m}$) a ensuite été gravée sur toute son épaisseur pour laisser apparaître les cellules de laminage et le réservoir de sortie. Une plaque de silicium ($20\mu\text{m}$) a ensuite été rajoutée avec pour seuls motifs, les canaux supérieurs des cellules de laminage. Enfin, une dernière plaque de silicium a été soudée face avant afin d'étanchéifier le dispositif. La figure 4.1 représente ces étapes successives de fabrication en se concentrant uniquement sur une cellule de laminage.

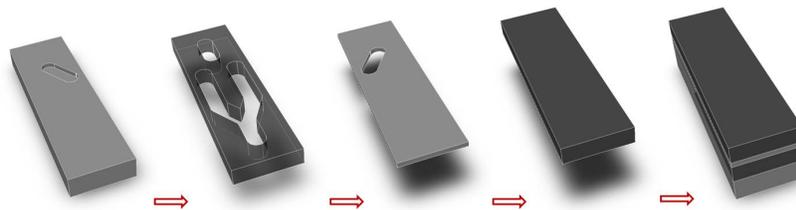
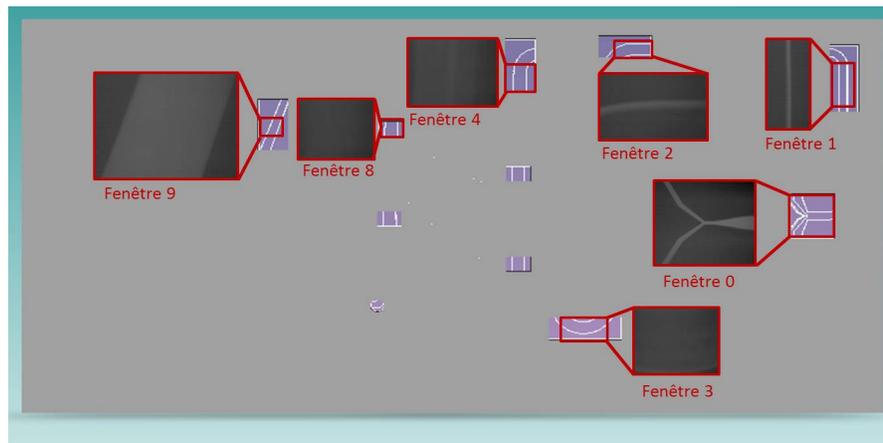
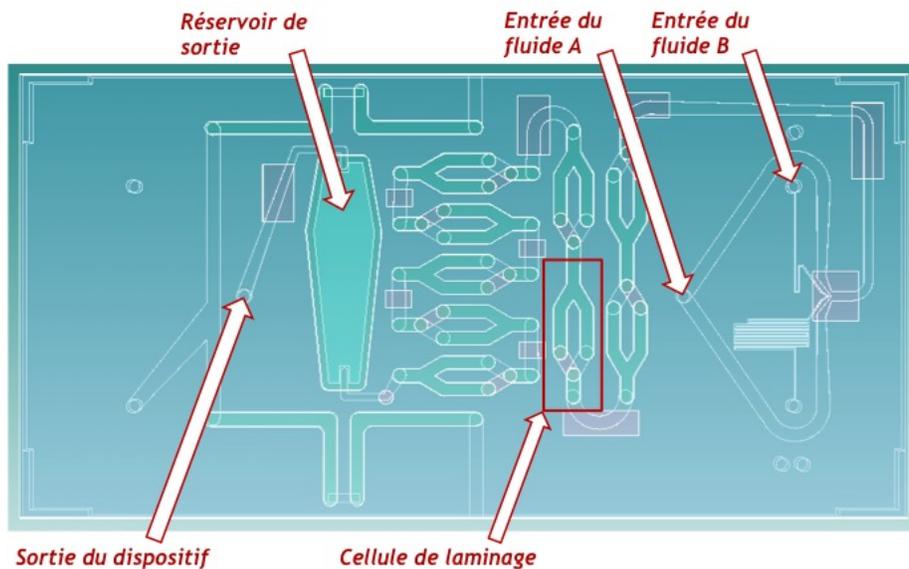


FIGURE 4.1 – Représentation schématique des étapes de fabrication pour la constitution d'une cellule de laminage (pas à l'échelle).

La dernière plaque de silicium a également pour but de protéger le circuit de la lumière (l'obscurité étant requise dans le cas d'expérience avec fluorescence) et sur laquelle seules des fenêtres d'observation ont été gravées afin de visualiser les étapes critiques lors du mélange (figure 4.2a). Les dimensions extérieures du dispositif sont similaires à celles du microrhéomètre (2cmx1cm), permettant ainsi de placer le dispositif dans le même support en epoxy, lui-même fixé sur la plaque d'acier usinée pour le microscope. On peut observer les principaux organes qui constituent ce dispositif sur la figure 4.2b.



(a).



(b).

FIGURE 4.2 – Modèle 3D du micromélangeur avec ses éléments principaux. **a.** : Modèle du micromélangeur avec ses fenêtres d'observation. Les images accolées à chaque fenêtre montrent l'évolution d'un mélange eau-fluorescéine au cours du temps. **b.** : Principaux organes du micromélangeur.

4.3 Principe de fonctionnement du mélangeur

Les deux fluides A et B sont injectés à l'entrée du dispositif dans une configuration de *flow-focusing* [69] (fenêtre 0 figure 4.2a) pour que le mélange puisse commencer à s'effectuer avant même d'atteindre la zone de laminage séquentiel. Cette zone est constituée de neuf cellules (voir figure 4.2b) qui vont successivement séparer et re-combiner le flux. Lors de son passage par l'un de ces éléments, le mélange est divisé en deux flux égaux, diminuant ainsi la longueur de diffusion, propice à un mélange plus efficace et moins coûteux en temps. La figure 4.3 illustre l'évolution du mélange lors de son passage dans la première cellule. Le micromélangueur comprend neuf éléments de laminage, soit un total de 512 division du flux, ce qui favorise le phénomène de diffusion et permet d'obtenir un mélange uniforme en sortie de dispositif.

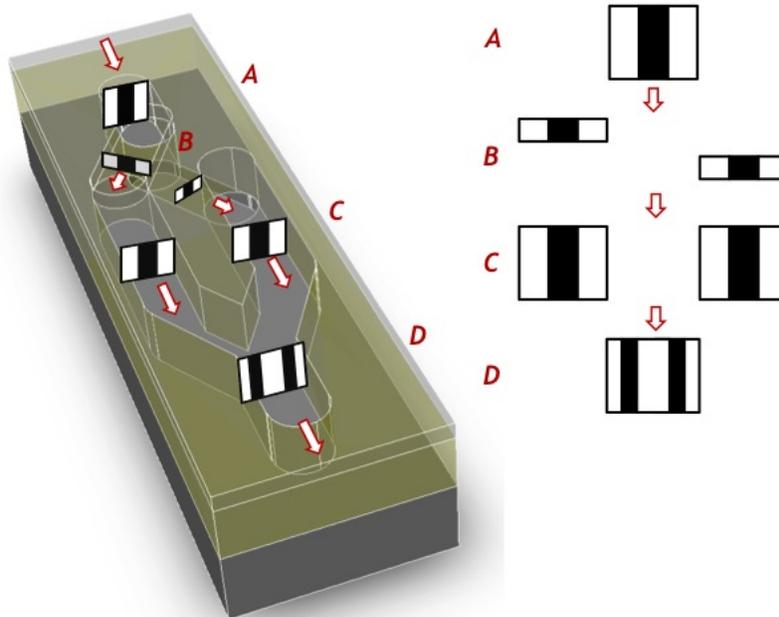


FIGURE 4.3 – Procédure de séparation et de re-combinaison du fluide dans une cellule de laminage.

Etape A : Entrée des liquides par le canal droit.

Etape B : Séparation et redimensionnement : le flux est conduit dans les deux canaux indépendants gravés dans le silicium ($20\mu m$ de profondeur) où il est redimensionné et séparé verticalement.

Etape C : Réarrangement : les deux flux sont ensuite conduit dans deux canaux rectangulaires dont la section est similaire à celle du canal d'entrée.

Etape D : Re-combinaison des deux flux en un canal pour compléter la procédure de mélange.

Une fois la zone de laminage passée, le flux est ensuite dirigé vers le réservoir avant d'arriver à la sortie du dispositif.

Le temps de résidence t_{resid} correspond au temps pendant lequel le fluide reste dans une cellule de laminage. Les canaux dans une cellule ont une largeur $w=300\mu m$, une hauteur $h=300\mu m$ (soit un diamètre hydraulique de $300\mu m$) et une longueur L d'environ $2mm$ (on négligera les canaux de séparation). Avec un débit de $200\mu L/min$, on obtient un temps de résidence $t_{resid}=6,19 \cdot 10^{-2}s$ par cellule. A présent, si l'on calcule le temps requis à un colorant fluorescent telle que la fluorescéine pour diffuser à travers le canal d'une cellule $t_{diff} = L_c^2/D$ où L_c est la longueur caractéristique du

système (choisie comme étant égale au diamètre hydraulique), et un coefficient de diffusion pour la fluorescéine de $0,64 \cdot 10^{-9} m^2/s$ [86], on obtient un temps de diffusion de $t_{diff}=4,26 \cdot 10^2 s$. Ce temps de diffusion relativement long se retrouve fortement diminué grâce au principe de séparation et re-combinaison qui réduit la longueur caractéristique de diffusion et permet d'obtenir un mélange quasi-final après avoir traversé quatre cellules de laminage (détails en section 4.4.4).

4.4 Mesure d'efficacité du mélange

4.4.1 Protocole expérimental

Avant de produire des solutions visqueuses à base de glycérol et d'eau, nous caractérisons le micromélangeur en effectuant des mesures d'intensité lumineuse à partir de fluorescéine diluée dans de l'eau DI pour vérifier l'efficacité du système. L'objectif de cette première série de mesure consiste à comparer l'intensité en sortie de dispositif de plusieurs solutions préparées manuellement, c'est à dire en diluant une solution mère 0.005% fluorescéine wt/wt eau DI à différentes concentrations (connues), et l'intensité du mélange réalisé *in-situ* avec les mêmes concentrations contrôlées par les débits respectifs des deux pousses-seringues. La figure 4.4 représente l'ensemble des clichés qui permettent d'évaluer l'évolution de l'intensité lors d'un mélange *in-situ*.

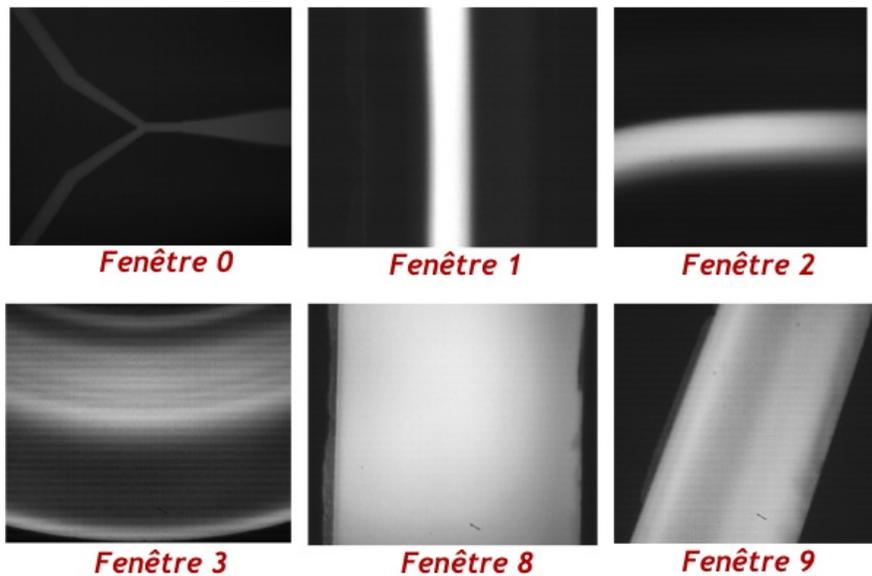


FIGURE 4.4 – Résultat d'une expérience de mélange où chaque image est utilisée pour évaluer l'intensité lumineuse .

Réglé sur le mode *epi-fluorescence*, le microscope est recouvert de papier d'aluminium sur tous les interstices susceptibles de faire passer la lumière extérieure. La lampe halogène du microscope est éteinte (en réduisant manuellement l'intensité à 0) et nous ne conservons comme source de lumière que la lampe à mercure.

Les fenêtres d'observation disposées à la sortie des cellules de laminage permettent de visualiser l'évolution du mélange dans le dispositif au cours de chaque expérience. Nous réalisons donc des clichés de ces fenêtres afin de pouvoir mesurer l'évolution de l'intensité, relative au mélange à l'aide de la caméra rapide (réglée avec un temps d'exposition de $100000 \mu s$). Pour chaque fenêtre observée, nous nous concentrons sur une zone du canal dont les dimensions restent identiques pour toutes les expériences. Cette zone est définie en mode *Bright Field* (mode normal d'observation avec la

lampe du microscope), afin de reprendre la même position de la région en mode *epi-fluorescence*. Nous mesurons également le bruit sur la région à étudier sans aucune source de lumière. En soustrayant le bruit aux clichés de mesure d'intensité à l'aide du logiciel *Image J*, on s'assure de pouvoir relever l'intensité réelle sur chaque pixel (l'intensité maximale ayant pour valeur 255 (pixel blanc) et l'intensité minimale 0 (pixel noir)). Après un traitement de cette zone par lequel nous moyennons l'intensité en fonction de la position du pixel par rapport à la largeur du canal, nous pouvons observer l'évolution du mélange *in situ* pour toutes les fenêtres.

4.4.2 Mesures de calibration

La solution mère ($C = 0.005\%$) est diluée dans de l'eau DI avec la balance analytique de façon à obtenir les concentrations massiques suivantes : $C/2$, $C/4$, $C/8$, $C/16$. Ces solutions de calibration sont ensuite injectées dans le mélangeur afin de traiter l'image en sortie de dispositif (fenêtre 9) pour mesurer l'intensité du mélange manuel (tableau 4.1).

TABLE 4.1 – Mesures d'intensités de la fluorescéine en sortie du dispositif (fenêtre 9) pour plusieurs concentrations.

fenêtre 9	Concentration (%)	Intensité moyenne (pour une image)	Intensité relative
C	0.005	18.6	1
C/2	0.0025	9.9	0.532258065
C/4	0.00125	6.1	0.327956989
C/8	0.000625	3.2	0.172043011
C/16	0.0003125	2.15	0.115591398

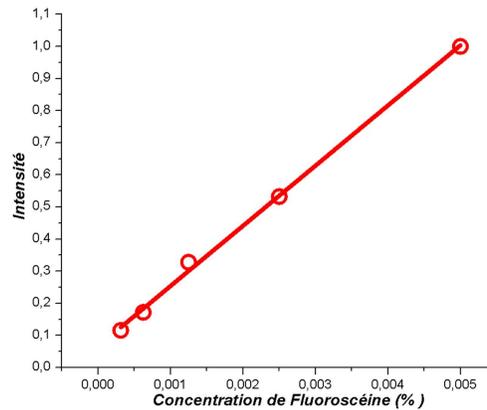


FIGURE 4.5 – Evolution de l'intensité lumineuse en fonction de la concentration de fluorescéine. Equation de la droite : $I = 187.37.C + 0.066$

Une fois ces valeurs de calibration obtenues, nous pouvons désormais procéder aux expériences permettant d'évaluer l'efficacité du dispositif en envoyant de façon séparée la solution-mère et l'eau DI aux mêmes concentrations que les solutions préparées à l'aide de la balance analytique, en contrôlant les débits des deux pousses-seringues.

4.4.3 Efficacité du micromélangeur.

L'objectif est d'obtenir les mêmes concentrations que pour la mesure de calibration en contrôlant les débits de chacun des liquides (tableau 4.1) pour pouvoir ensuite comparer les intensités obtenues

manuellement et *in-situ*.

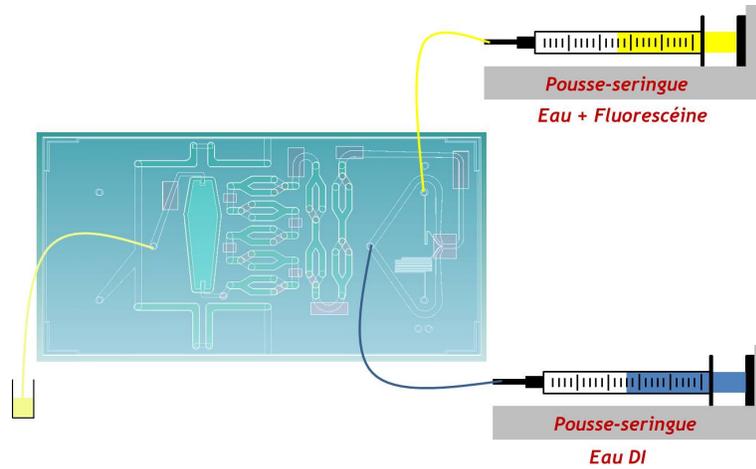


FIGURE 4.6 – Protocole expérimental pour valider l'efficacité du mélange lorsque les deux fluides sont injectés à débit contrôlé dans le dispositif.

Prenons d_1 le débit de la phase externe (eau DI) et d_2 le débit de la phase interne (solution mère de fluorescéine), on peut écrire :

$$C = \frac{d_2}{(d_1 + d_2)} \quad (4.1)$$

En fixant le débit de d_1 à une valeur constante et connaissant la concentration finale C que doit avoir le mélange final, il suffit de déterminer le débit d_2 qui s'obtient à partir de l'équation 4.1 : $d_2 = C/(C - 1) \cdot d_1$.

On choisira un débit constant de la phase externe de $100 \mu\text{L}/\text{min}$. L'ensemble des données sont répertoriées dans le tableau 4.2. Il est important de noter que les deux expériences (mesures de calibration avec le mélange réalisé manuellement et le mélange imposé par les débits) ont été réalisées en même temps. Cela implique donc que la solution mère est la même (pas de dégradation de la solution au cours du temps). La région d'intérêt est rigoureusement la même, et par conséquent, la mesure d'intensité de la solution mère (186 pour C dans le tableau 4.1) est la même dans les deux expériences.

TABLE 4.2 – Mesures d'intensités de la fluorescéine en sortie du dispositif (fenêtre 9) pour plusieurs concentrations obtenues à l'aide des deux pousses seringues.

fenêtre 9	Φ_{externe} ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Φ_{interne} ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Concentration (%)	Intensité moyenne (pour une image)	Intensité relative
C			0,005	18,6	1
C/2	100	100	0,0025	9,3	0,5
C/4	100	33,3	0,00125	4,45	0,239247312
C/8	100	14,3	0,000625	1,7	0,091397849
C/16	100	6,67	0,0003125	1,1	0,059139785

L'équation de la droite d'intensités obtenue par le mélange *in-situ* est $I = 203,9195.C - 0,01714$ semblable à celle du mélange manuel $I = 187.37426.C + 0.06653$. On peut donc en conclure que le mélange s'effectue correctement. A présent, il nous faut connaître l'influence du glycérol sur la qualité du mélange généré à partir du mélangeur.

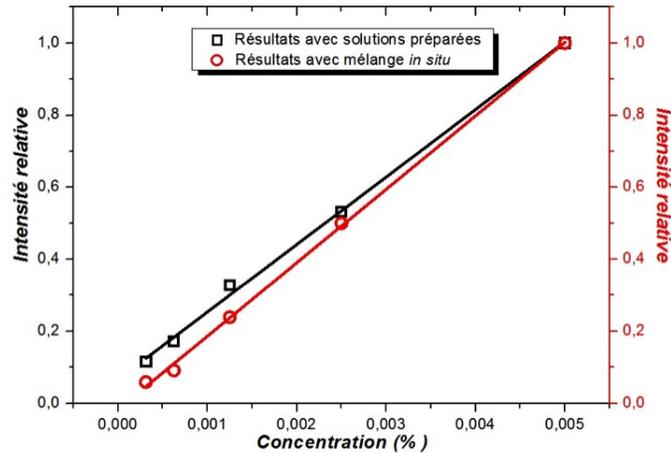


FIGURE 4.7 – Comparaison des intensités relatives en fonction de la concentration de fluorescéine pour les expériences avec mélange réalisé par le mélangeur et manuellement.

4.4.4 Solutions à base de glycérol.

L'objectif est de vérifier si le micromélangeur est capable d'effectuer un mélange complet lorsque du glycérol est injecté dans la phase externe. Le fait de garder la fluorescéine dans le mélange permet de constater, au vu des mesures d'intensités, que le mélange s'effectue correctement.

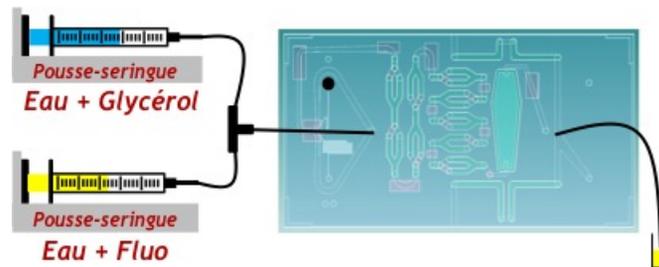


FIGURE 4.8 – Protocole expérimental pour la mesure de l'intensité d'une solution à base de glycérol et de fluorescéine.

De la même façon que précédemment, la préparation manuelle des mélanges et le traitement des images associées serviront de référence comparatives avec les intensités relatives au mélange *in-situ*. Une fois ces mesures effectuées, nous pouvons injecter, pour les différents débits relatifs aux concentrations utilisées pour la calibration (voir tableau 4.3), les deux fluides à l'aide des pousse-seringues. Pour cette série de mesures on choisit de mesurer l'intensité de la fluorescence sur l'ensemble des fenêtres du dispositifs de façon à pouvoir observer l'évolution complète du mélange au cours d'une expérience.

Les deux fluides utilisés sont une solution de fluorescéine (0.005% fluorescéine wt/wt eauDI) et un mélange eau-glycérol (60% glycérol wt/wt 40% eauDI) notées respectivement *Fluo* et mélange_{eau-glycérol}, envoyées indépendamment à l'aide des pousse-seringues. Dans une première série de mesures, nous injectons les fluides dans le mélangeur par les deux entrées respectives afin de mesurer l'influence du *flow-focusing* sur le mélange en entrée du dispositif. Dans une seconde série de mesures, nous ferons l'entrée de la solution *Fluo* et n'envoyons le mélange qu'à travers la seconde entrée au moyen

d'un T connecté aux deux pousses-seringues (figure 4.8). En comparant les résultats en terme de qualité du mélange, nous pouvons ainsi opter pour la méthode la plus efficace pour réaliser notre mélange.

TABLE 4.3 – Ensemble des débits imposés avec la concentration de glycérol associée.

fenêtre 9	mélange _{eau-glycérol} ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Fluo ($\mu\text{L}/\text{min}$)	Concentration (%)	Concentration volumique de glycérol (%)
C			0.005	
C/2	100	100	0.0025	30.00
2C/3	50	100	0.003333333	20.00
5C/6	20	100	0.004166667	10.00
C/6	100	20	0.000833333	50.00
C/3	100	50	0.001666667	40.00

Nous allons utiliser un indice de mélange pour évaluer l'évolution du mélange mais il n'y a pas de standards clairs dans la littérature pour l'évaluation d'un mélange surtout quand les fluides sont observés en projection 2D. Un premier indice qui pourrait être utilisé, noté m_i , se base sur le rapport entre l'écart type de l'intensité de fluorescence et la moyenne de ce signal :

$$m_i = 1 - \frac{\sigma_I}{I_{moy}} \quad (4.2)$$

où l'écart type de l'intensité au cours de l'expérience est σ_I et la moyenne de l'intensité I_{moy} .

Cet indice sert à évaluer l'évolution d'un mélange proche d'une consistance homogène et qui, lors d'un mélange parfait, atteint la valeur 1. Cependant, pour des mélanges très hétérogènes, il est possible que l'écart type soit parfois supérieur à la valeur de la moyenne ce qui entraîne une valeur négative de l'indice de mélange.

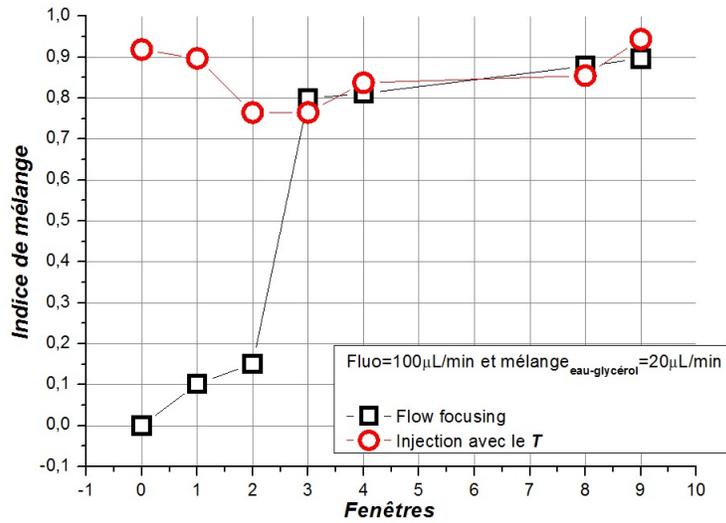
Pour pallier à ce problème dans le cas de mélanges très hétérogènes, nous allons normaliser le rapport écart type/moyenne par rapport à celui correspondant à l'état le moins mélangé présent à l'entrée du dispositif. Dans le cas de nos expériences, cela correspond à l'état présent en fenêtre 0 lors d'une injection en *flow-focusing*). Ainsi, nous nous assurons d'observer un indice de mélange $m_{i-relat}$ compris entre 0 et 1 où 1 correspond à l'état d'un mélange parfaitement réalisé. Les travaux de [71] et [70] utilisent d'ailleurs une méthode similaire de calcul pour déterminer l'indice de mélange. En appliquant la méthode décrite ci-dessus, on obtient un indice noté $m_{i-relat}$ qui se définit par :

$$m_{i-relat} = 1 - \frac{\sigma_n}{\sigma_{0-FF}} \quad (4.3)$$

où σ_n représente l'écart type de l'intensité pour chaque mesure et chaque n fenêtre et ce pour les expériences réalisées avec l'envoi en *flow-focusing* et à l'aide du T . σ_{0-FF} représente l'écart type de l'intensité mesurée sur la fenêtre 0 avec l'envoi en *flow-focusing* par expérience et est utilisé comme référence de situation du mélange lors de son injection dans le dispositif pour les deux méthodes d'envoi.

TABLE 4.4 – Expérience pour mélange $eau-glycérol=20\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$.

Fenêtres	fenêtre 0	fenêtre 1	fenêtre 2	fenêtre 3	fenêtre 4	fenêtre 8	fenêtre 9
$m_{i-relat}$ (flow-focusing)	0	0,101866373	0,151647682	0,79925254	0,811376968	0,878321827	0,896177388
$m_{i-relat}$ (T)	0,91868027	0,896992803	0,76451086	0,764832389	0,837227687	0,854693244	0,943897301



(a).

FIGURE 4.9 – Expérience réalisée pour mélange $eau-glycérol=20\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. **a.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i . **b.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.

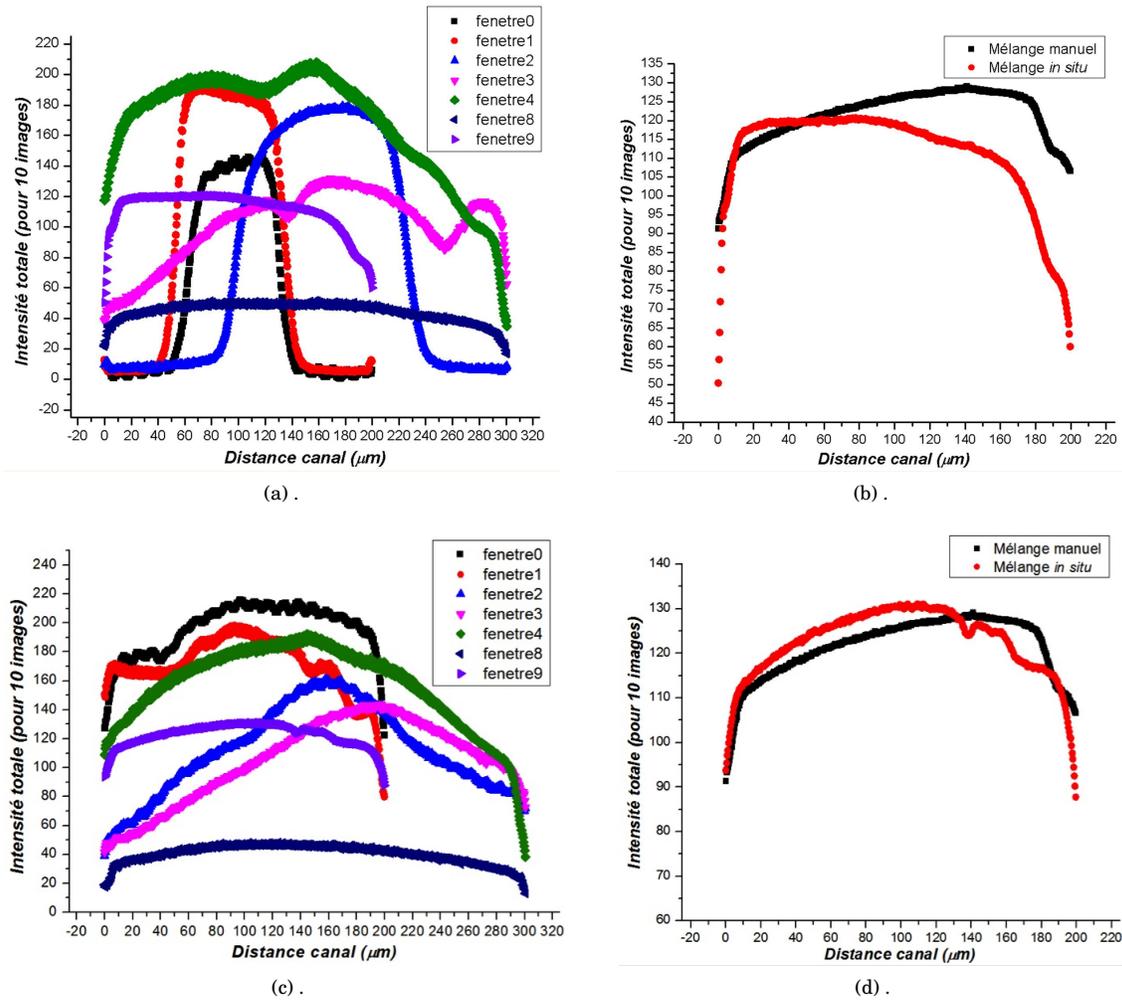
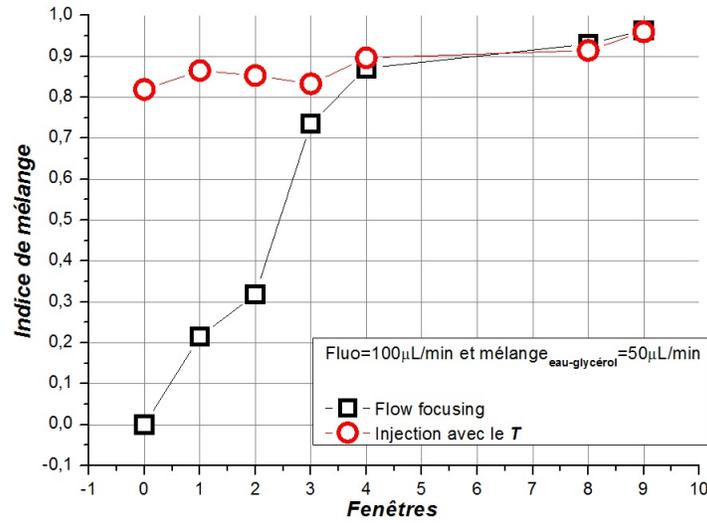


FIGURE 4.10 – Observation de l'évolution du mélange pour mélange_{eau-glycérol}=20 $\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=100\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : **a.** et **T : c.**) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : **b.** et **T : d.**).

TABLE 4.5 – Expérience pour mélange $e_{\text{eau-glycérol}}=50\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=100\mu\text{L}/\text{min}$.

Fenêtres	fenêtre 0	fenêtre 1	fenêtre 2	fenêtre 3	fenêtre 4	fenêtre 8	fenêtre 9
$m_{i\text{-relat}}$ (flow-focusing)	0	0,215699776	0,318555122	0,735238689	0,870974414	0,930126624	0,963954749
$m_{i\text{-relat}}$ (T)	0,818930342	0,864981593	0,853166145	0,832935318	0,896437941	0,914448443	0,959742682



(a).

FIGURE 4.11 – Expérience réalisée pour mélange $e_{\text{eau-glycérol}}=50\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=100\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des phases. **a.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i . **b.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i\text{-relat}}$.

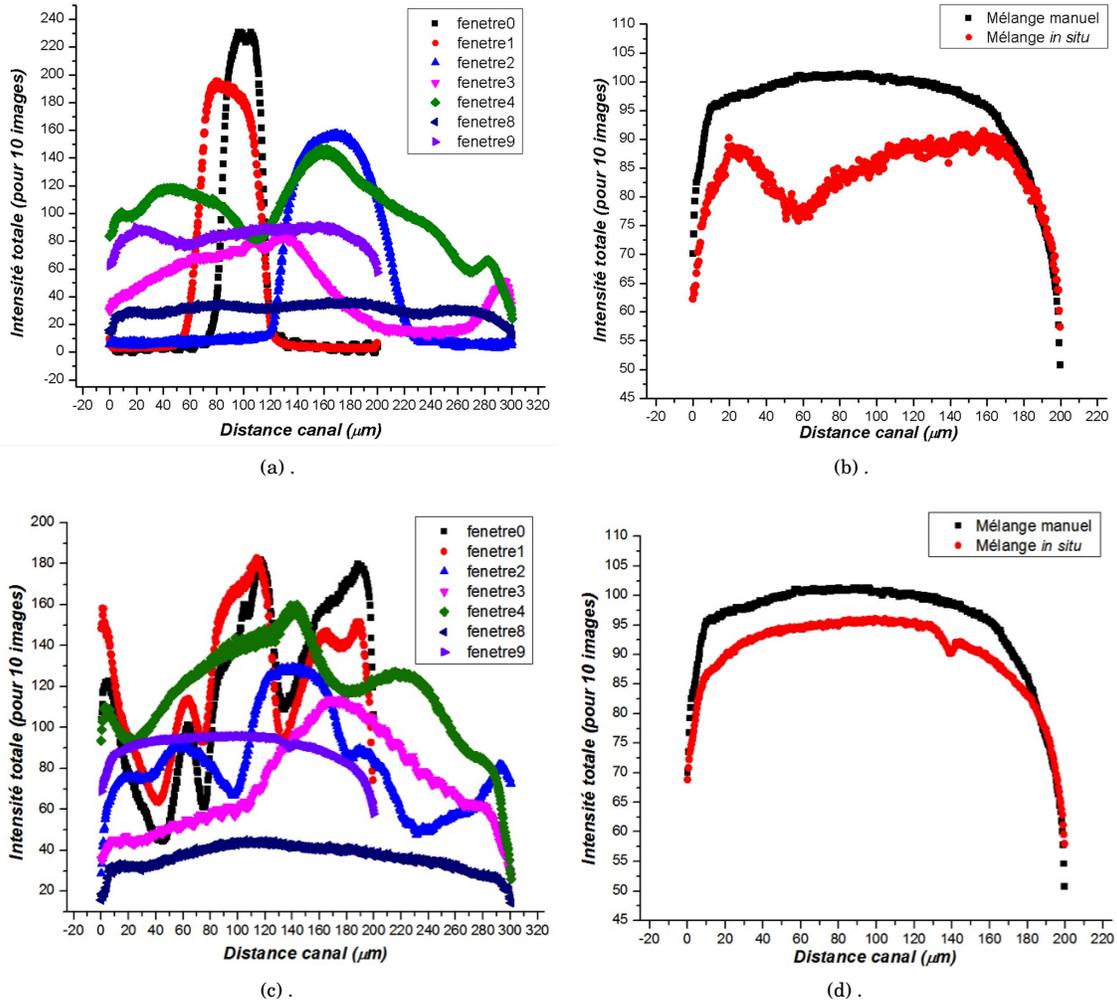
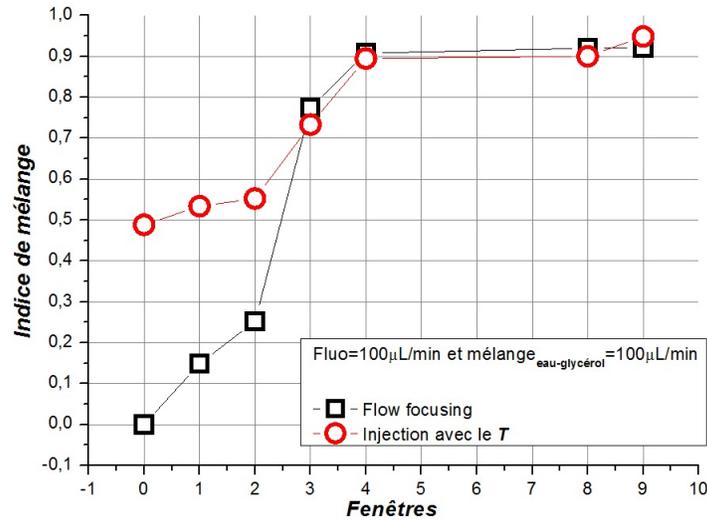


FIGURE 4.12 – Observation de l'évolution du mélange pour mélange $_{eau-glycérol}=50\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=100\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : **a.** et T : **c.**) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : **b.** et T : **d.**).

TABLE 4.6 – Expérience pour mélange $e_{eau-glycérol}=100\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$.

Fenêtres	fenêtre 0	fenêtre 1	fenêtre 2	fenêtre 3	fenêtre 4	fenêtre 8	fenêtre 9
$m_{i-relat}$ (flow-focusing)	0	0,148833806	0,252753035	0,774096322	0,907435567	0,91972768	0,920761048
$m_{i-relat}$ (T)	0,488249451	0,533704901	0,552415341	0,733171107	0,894620901	0,899793441	0,948483281



(a).

FIGURE 4.13 – Expérience réalisée pour mélange $e_{eau-glycérol}=100\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. **a.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i . **b.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.

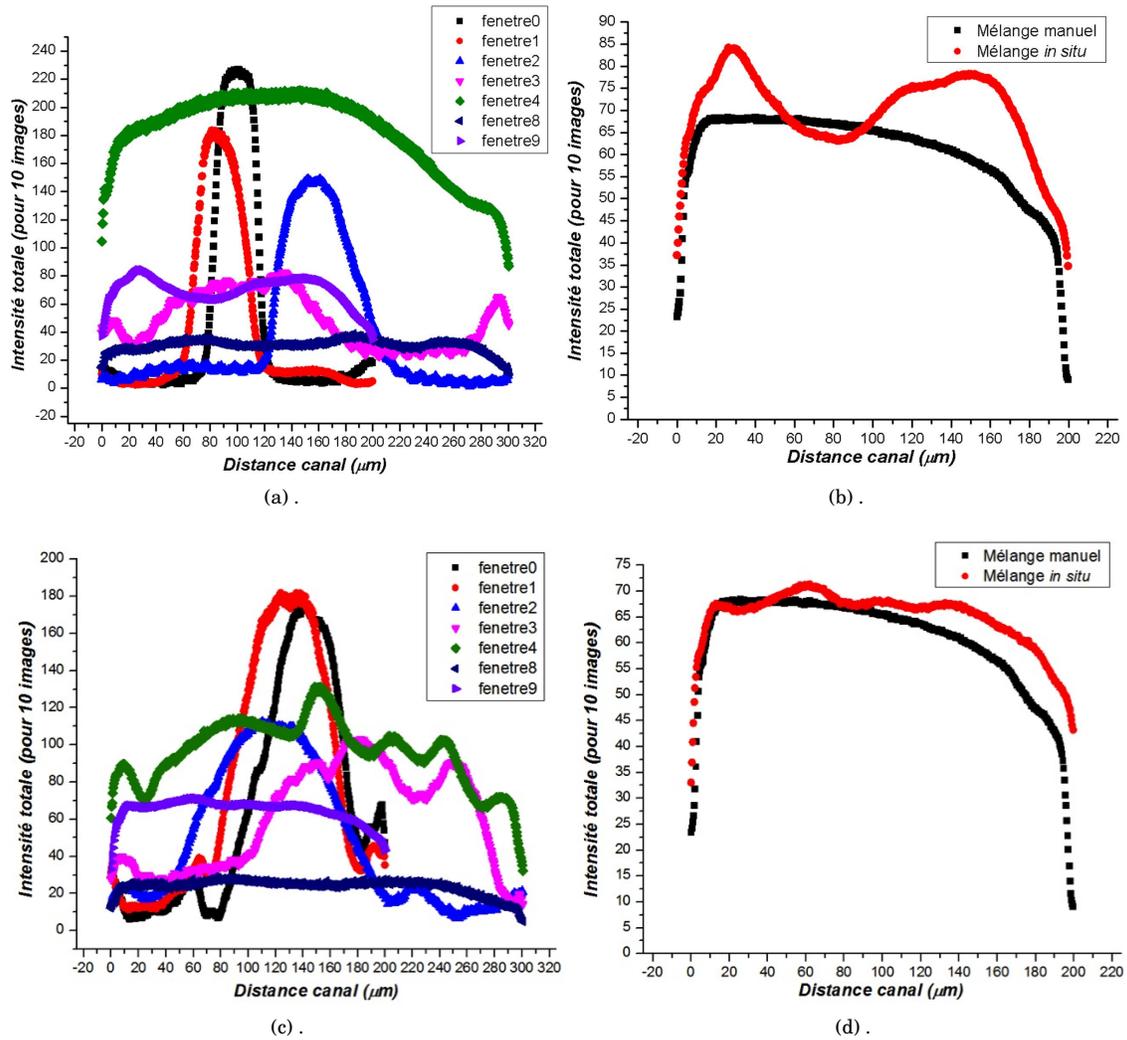
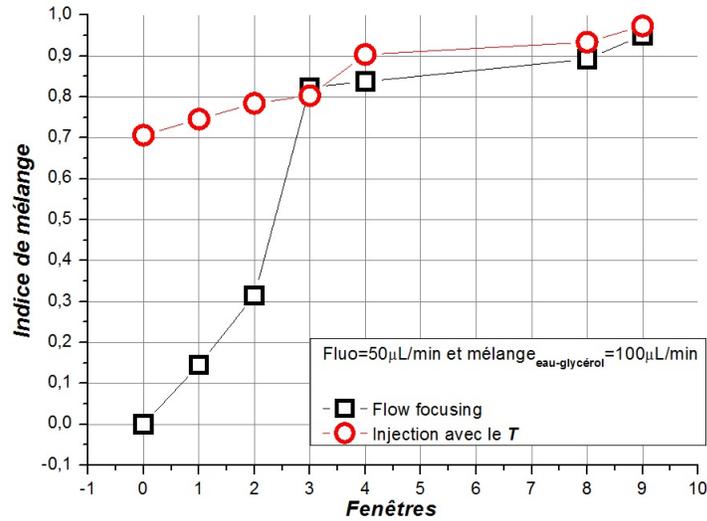


FIGURE 4.14 – Observation de l'évolution du mélange pour mélange_{eau-glycérol}=100 $\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=100\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : **a.** et **T : c.**) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : **b.** et **T : d.**).

TABLE 4.7 – Expérience pour mélange $e_{\text{eau-glycérol}}=100\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=50\mu\text{L}/\text{min}$.

Fenêtres	fenêtre 0	fenêtre 1	fenêtre 2	fenêtre 3	fenêtre 4	fenêtre 8	fenêtre 9
$m_{i-relat}$ (flow-focusing)	0	0,145230793	0,314804828	0,823450484	0,837340977	0,892025682	0,95051899
$m_{i-relat}$ (T)	0,706423268	0,745520481	0,784394686	0,802780841	0,903520655	0,933718866	0,973335604



(a).

FIGURE 4.15 – Expérience réalisée pour mélange $e_{\text{eau-glycérol}}=100\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=50\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. **a.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i . **b.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.

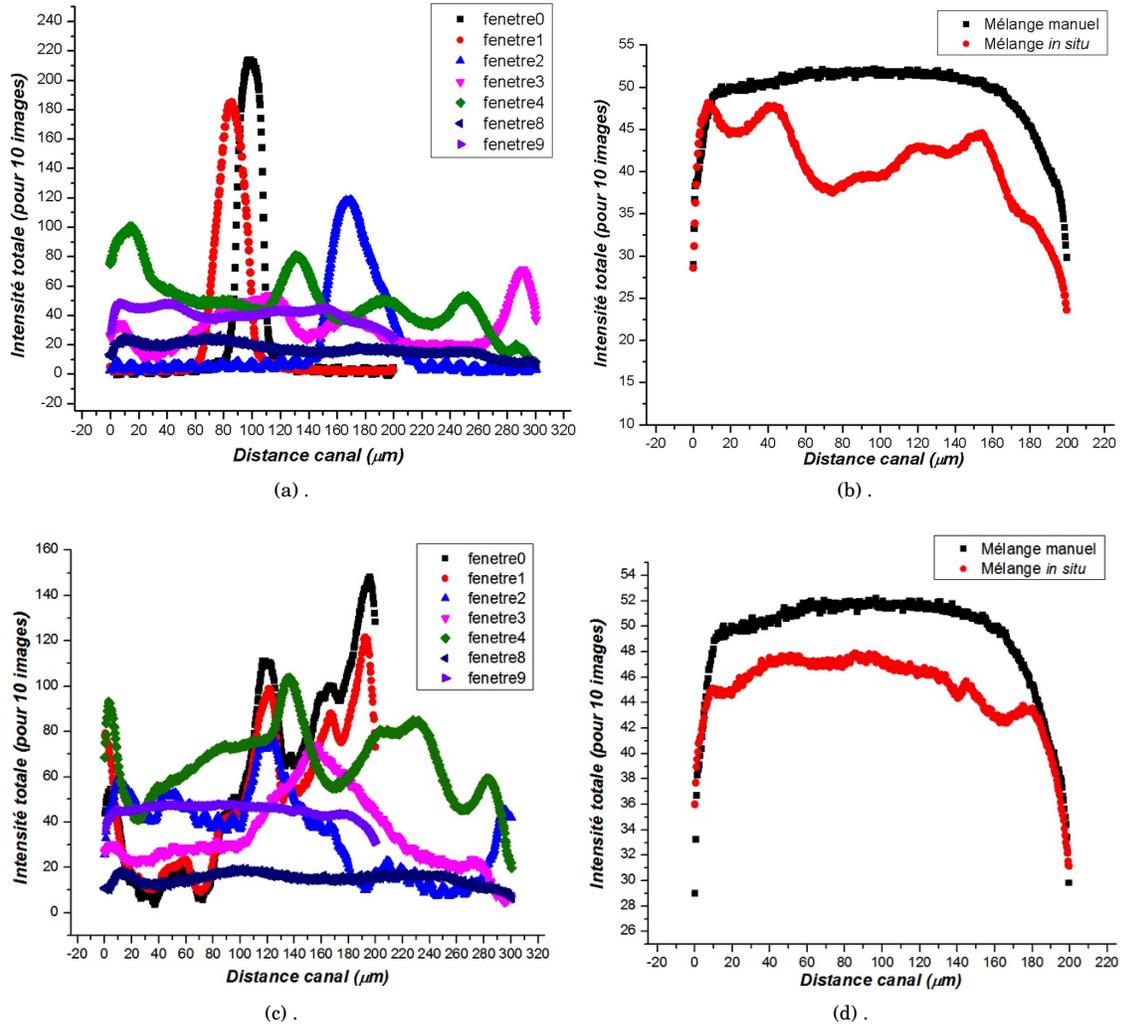
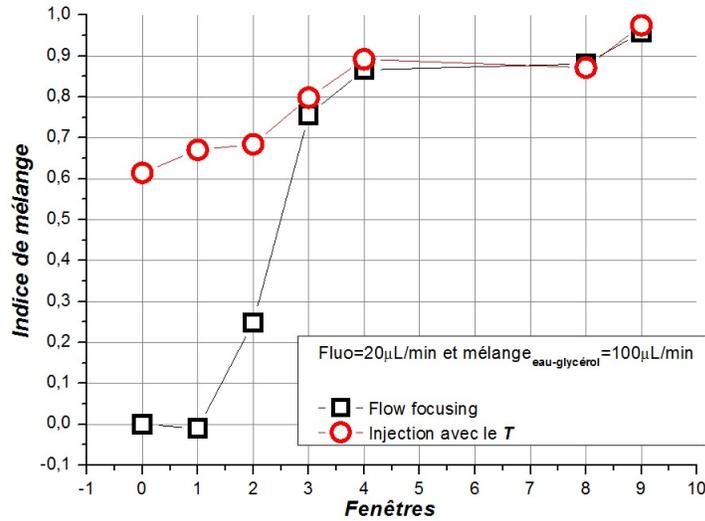


FIGURE 4.16 – Observation de l'évolution du mélange pour mélange_{eau-glycérol}=100 $\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=50\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : **a.** et **T : c.**) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : **b.** et **T : d.**).

TABLE 4.8 – Expérience pour mélange $e_{\text{eau-glycérol}}=100\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=20\mu\text{L}/\text{min}$.

Fenêtres	fenêtre 0	fenêtre 1	fenêtre 2	fenêtre 3	fenêtre 4	fenêtre 8	fenêtre 9
$m_{i-relat}$ (flow-focusing)	0	-0,009875621	0,24865898	0,755757077	0,86605629	0,880681883	0,957806062
$m_{i-relat}$ (T)	0,614276738	0,670535541	0,684035203	0,79823148	0,891911681	0,871301046	0,974790804



(a).

FIGURE 4.17 – Expérience réalisée pour mélange $e_{\text{eau-glycérol}}=100\mu\text{L}/\text{min}$ et $Fluo=20\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. **a.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i . **b.** : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.

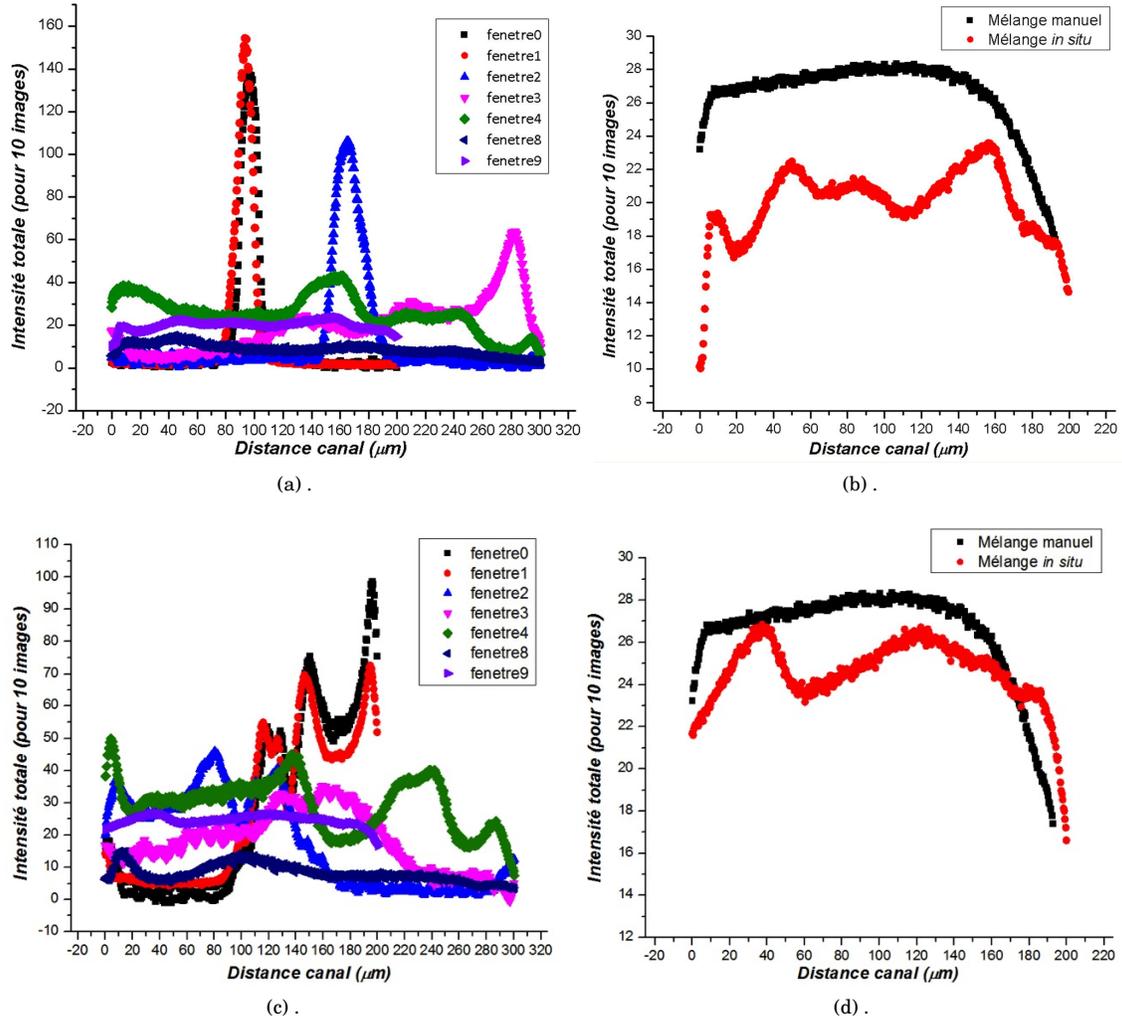
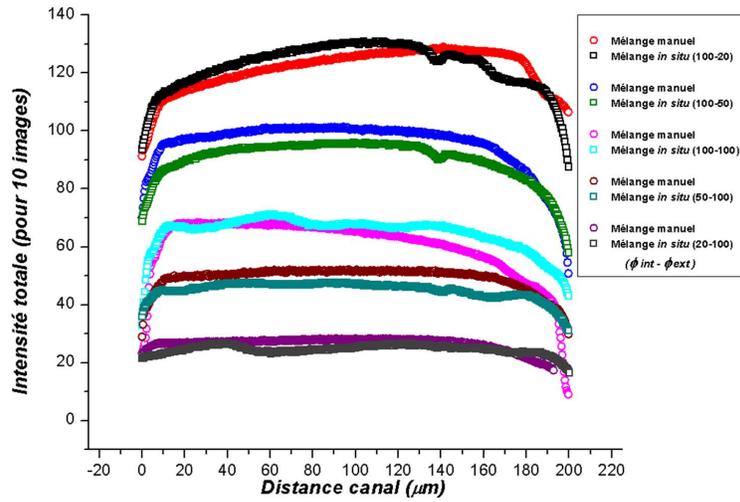


FIGURE 4.18 – Observation de l'évolution du mélange pour mélange_{eau-glycérol}=100μL/min et $Fluo=20\mu\text{L}/\text{min}$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing **a.** et **T c.**) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : **b.** et **T d.**).

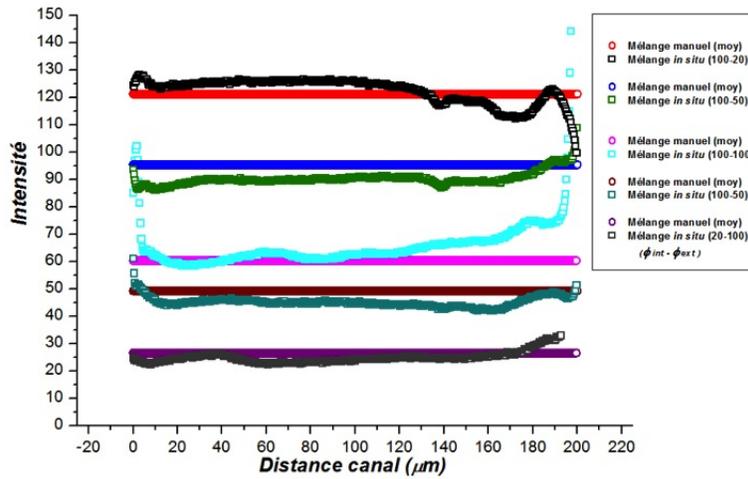
Au vu des résultats en terme d'efficacité du mélange, nous pouvons constater que l'ajout du T en entrée du mélangeur favorise la qualité du mélange final.

La figure 4.19 représente un comparatif l'ensemble des intensités en sortie de dispositif dont les mélanges ont été préparés manuellement ou générés *in-situ* pour toutes les concentrations et injectées à l'aide du T . On remarque sur les profils d'intensité des perturbations sur les bords du canal dues aux effets d'ombrages de la fenêtre. En effectuant une mesure d'intensité relative, il est d'avantage possible de mesurer l'écart entre les les mesures avec le mélange réalisé manuellement. On note $\bar{I}_{\text{mélange-manuel}}$ l'intensité moyenne du mélange réalisé manuellement et I_{relative} l'intensité relative du mélange effectué à partir du mélangeur définie par :

$$I_{\text{relative}} = \bar{I}_{\text{mélange-manuel}} \cdot \frac{I_{\text{mesure}}}{\bar{I}_{\text{mélange-manuel}}} \quad (4.4)$$

FIGURE 4.19 – Comparaison des intensités avec le rajout du T en entrée du micromélangeur.

En appliquant la relation 4.4 sur les mesures d'intensités relevées, on obtient alors les courbes d'intensité relative en figure 4.20

FIGURE 4.20 – Comparaison des intensités relatives avec le rajout du T en entrée du micromélangeur.

L'écart type de $I_{relative}$ pour chacune des mesures de la figure 4.20 est répertorié dans le tableau 4.9 :

TABLE 4.9 – Ecart type de l'intensité $I_{relative}$ pour l'ensemble des mesures .

mélange _{eau-glycerol-Fluo} ($\mu\text{L}/\text{min}-\mu\text{L}/\text{min}$)	20-100	50-100	100-100	100-50	100-20
$\sigma_{I_{relative}}$	2,033957841	1,882875883	21,38726096	2,458412944	4,678612516

TABLE 4.10 – Observation de la qualité du mélange final en sortie de dispositif pour l'ensemble des concentrations.

mélange _{eau-glycerol-Fluo} ($\mu\text{L}/\text{min}$ - $\mu\text{L}/\text{min}$)	20-100	50-100	100-100	100-50	100-20
$m_{i\text{-relat}}$ (flow-focusing)	0,896177388	0,963954749	0,920761048	0,95051899	0,957806062
$m_{i\text{-relat}}$ (T)	0,943897301	0,959742682	0,948483281	0,973335604	0,974790804

Nous pouvons conclure que le micromélangeur réalise des mélanges complets à plus de 94% à l'aide du T en entrée du dispositif. Le T permet en effet un début de mélange des deux phases avant d'avoir atteint l'entrée du dispositif, ce qui assure un mélange final de meilleure qualité par rapport au *flow-focusing* et ce pour la plupart des concentrations imposées.

4.5 Association du mélangeur et du rhéomètre - Mesures de viscosités variables

4.5.1 Mesures à débits contrôlés.

Dans cette section, nous introduisons le microrhéomètre afin de mesurer la viscosité d'un mélange eau-glycérol généré à partir du micromélangeur. Nous utilisons deux pousses-seringues afin d'injecter chacun des deux fluides à débits contrôlés ce qui nous permet de maîtriser la concentration volumique de glycérol de la solution finale. Les deux phases utilisées au cours des expériences sont une solution visqueuse de base 80% glycérol wt/wt 20% eau DI (44.27mPa.s à 25°C) et de l'eau DI. Les seringues en plastique utilisées lors des mesures de fluorescence seront remplacées par des seringues en verre pour contenir les deux fluides. Les résultats présentés dans la section 4.4.4 ont montré de meilleurs performance en terme d'efficacité du mélange lorsque les deux fluides sont envoyés par l'intermédiaire d'un T placé en entrée du mélangeur. Nous choisissons donc de conserver cette méthode d'envoi pour l'ensemble de nos expériences (figure 4.21). Le rhéomètre est directement connecté au mélangeur par un tube en PEEK dont la longueur a été réduite le plus possible afin de réduire au maximum le volume mort entre les deux dispositifs.

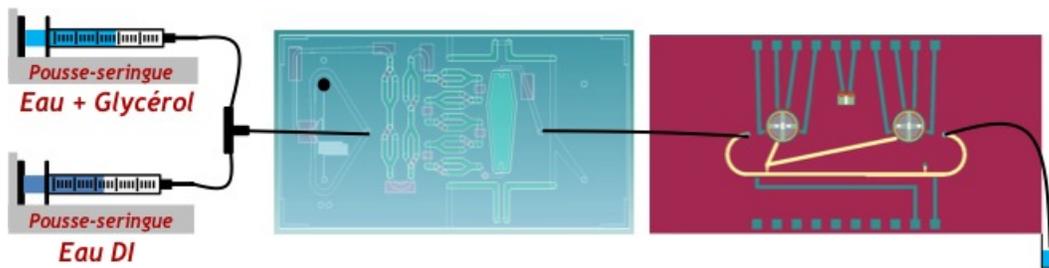


FIGURE 4.21 – Protocole expérimental avec les deux dispositifs. (On notera que l'entrée de la phase interne est bouchée pour empêcher le mélange de sortir).

Afin d'observer plus facilement les variations de la viscosité du mélange sans avoir à tenir compte de la modification de la contrainte de cisaillement au cours de la mesure, on fait varier le débit de l'eau DI ainsi que celui du mélange eau-glycérol en conservant un débit total identique pour chaque palier (200 $\mu\text{L}/\text{min}$).

Les débits imposés à chaque pousse-seringue imposent une concentration volumique de glycérol différente à chaque palier que l'on convertit en concentration massique à partir de la densité du mélange relative à la température de l'expérience. Les données théoriques issues de [87] nous ont

permis d'extrapoler une fonction d'approximation nous indiquant la densité théorique du mélange pour une température donnée.

Une fonction d'approximation a également été définie pour obtenir la valeur de la viscosité en fonction de la température (issues de [80]) d'un mélange eau-glycérol à différentes concentrations massiques de glycérol (notée $\eta_{\text{modèle}}$). Les valeurs théoriques de viscosités obtenues avec cette approximation ont été comparées à celles obtenues par un modèle mathématique semi-empirique proposé par [85] et ont indiqué un écart inférieur à 2% entre les deux méthodes d'estimation. Nous avons choisi de comparer ainsi la viscosité obtenue au cours de nos expériences (notée $\eta_{\text{mesurée}}$) à celle obtenue par la fonction d'approximation où la viscosité théorique notée $\eta_{\text{modèle}}$ est issue des données de [80].

TABLE 4.11 – Mesure de la viscosité du mélange à une température de 22°C ($\rho_{\text{mélange}}=1.2072\text{g/mL}$ et $\rho_{\text{eauDI}}=0.9539\text{g/mL}$) avec un débit total de 200 $\mu\text{L/min}$.

Débits eauDI - Mélange ($\mu\text{L/min}$)	Concentration massique de glycérol (%)	Température : 22degC		
		$\eta_{\text{mesurée}}$ ($\text{mPa}\cdot\text{s}$)	$\eta_{\text{modèle}}$ ($\text{mPa}\cdot\text{s}$)	Ratio
190-10	5.01	0.9980088	1.085657	1.087823
180-20	9.91	1.1764477	1.234965	1.049741
170-30	14.72	1.3390846	1.415813	1.057299
160-40	19.42	1.5459105	1.634965	1.057606
150-50	24.04	1.7938645	1.901077	1.059766
140-60	28.55	2.0623420	2.225503	1.079114
130-70	32.98	2.4166339	2.623498	1.085600
120-80	37.33	2.8811874	3.116050	1.081516
110-90	41.59	3.3976213	3.732627	1.098600
100-100	45.76	4.1000044	4.515297	1.101291

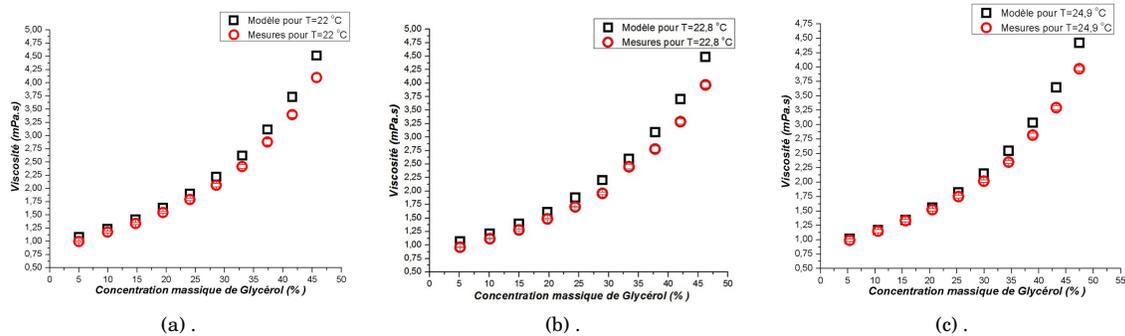


FIGURE 4.22 – Observation de l'évolution de la viscosité du mélange eau DI-glycérol en fonction de la concentration massique de glycérol et de la température. **a.** : Evolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol pour $t=22^\circ\text{C}$ ($\rho_{\text{mélange}}=1.2072\text{g/mL}$ et $\rho_{\text{eauDI}}=0.9539\text{g/mL}$). **b.** : Evolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol pour $t=22.8^\circ\text{C}$ ($\rho_{\text{mélange}}=1.2067\text{g/mL}$ et $\rho_{\text{eauDI}}=0.9359\text{g/mL}$). **c.** : Evolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol pour $t=24.9^\circ\text{C}$ ($\rho_{\text{mélange}}=1.2055\text{g/mL}$ et $\rho_{\text{eauDI}}=0.8914\text{g/mL}$).

On peut observer sur chacun des graphiques de la figure 4.22 un écart constant (environ 10%) entre la viscosité du modèle et la viscosité mesurée. Cet écart peut provenir du fait que le nombre de points de mesures fixé dans le programme de débits ne soit pas suffisant pour atteindre la valeur réelle de la viscosité du mélange. En d'autres termes, le temps de mesure à chaque palier serait

insuffisant pour que le mélange envoyé par les deux pousses-seringues atteigne la membrane et que la déflexion de celle ci corresponde parfaitement à celle attendue pour une viscosité relative au mélange envoyé.

L'hypothèse d'un échauffement thermique peut également être envisagée. Afin de vérifier si une augmentation de la température du fluide à l'intérieur du dispositif est à l'origine de ce décalage, nous nous proposons de comparer les résultats expérimentaux au modèle mathématique de la viscosité pour une température égale à celle relevée par le thermocouple à laquelle on ajouterait arbitrairement $3^{\circ}C$.

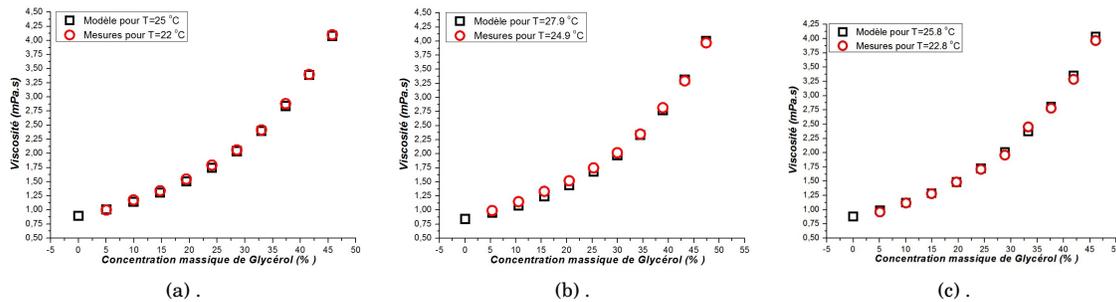


FIGURE 4.23 – Comparaison des tendances de l'évolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol au cours de expériences réalisées à différentes température. La courbe du modèle mathématique est représentative de la viscosité à une température rehaussée de $3^{\circ}C$.

À la vue des courbes en figure 4.23, il est certain qu'une ou plusieurs sources de chaleur extérieures à l'expérience impliquant des variations de la température ont un impact sur l'écart observé entre les valeurs expérimentales et théoriques observé sur les figures 4.22 et 4.22a. Nous mesurerons la variation de température que pourrait subir le fluide dus à un échauffement thermique visqueux de la même façon qu'en section 3.3.1 en appliquant la méthode de calcul détaillée en section 1.1.3.3 :

On se focalisera uniquement sur les canaux des cellules de laminage d'une largeur w de $300\mu m$ gravés à une profondeur h $20\mu m$ et pour une longueur cumulée de $1.6cm$. On rappelle que les débit du mélange et de l'eau varient (constituant cependant un débit constant de $200\mu L/min$), la concentration massique de glycérol se voit donc modifiée à chaque nouveau palier affectant, la densité du mélange final, la viscosité et ainsi la résistance hydrodynamique.

À partir des équations 1.23 et 1.24 (voir section 1.1.3.3), nous sommes alors en mesure de déterminer la hausse de température du fluide à l'intérieur du dispositif pour l'expérience à $22^{\circ}C$ (figure 4.22a et tableau 4.11) :

La variation de température par échauffement thermique au cours de cette expérience est inférieure aux $3^{\circ}C$ attendus puisqu'elle n'est que de $0.5^{\circ}C$ au maximum. Parmi les autres sources de chaleur potentielles, la lampe du microscope peut avoir un impact non négligeable quant à l'augmentation de la température du dispositif (du fluide) au cours de la mesure.

Il est également possible d'envisager le fait qu'une erreur humaine ait été commise lors de la sélection du diamètre intérieur de la seringue sur le pousse-seringue. En effet, lors du rajout du second pousse-seringue, une mauvaise indication du diamètre intérieur de la seringue a pu être faite ce qui entraîne une erreur dans les débits et change la concentration de glycérol. L'erreur systématique pourrait alors se justifier en supposant que la variation du diamètre intérieur de la seringue engendre une diminution du débit de l'ordre de 10%. En partant de cette hypothèse, on retrouve une valeur de la mesure quasi identique à celle attendue avec une erreur de l'ordre de 2% (figure 4.24).

TABLE 4.12 – Evolution de la température du fluide par échauffement thermique lors du passage dans les cellules de laminages du micromélangeur.

C mas (%)	η_{th} (Pa.s)	Rh (Pa.s/m ³)	W (J/s)	Densité (kg/m ³)	M déplacée (kg/s)	T1 (K)	T1 (°C)
0,0000	9,6249·10 ⁻⁴	7,9571·10 ¹³	8,8412·10 ⁻⁴	9,9430·10 ²	3,3143·10 ⁻⁶	2,9527·10 ²	22,120
5,0092	1,0856·10 ⁻³	8,9753·10 ¹³	9,9726·10 ⁻⁴	1,0075·10 ³	3,3585·10 ⁻⁶	2,9528·10 ²	22,134
9,9142	1,2349·10 ⁻³	1,0209·10 ¹⁴	1,1344·10 ⁻³	1,0205·10 ³	3,4019·10 ⁻⁶	2,9530·10 ²	22,150
14,718	1,4158·10 ⁻³	1,1704·10 ¹⁴	1,3005·10 ⁻³	1,0333·10 ³	3,4443·10 ⁻⁶	2,9532·10 ²	22,170
19,424	1,6349·10 ⁻³	1,3516·10 ¹⁴	1,5018·10 ⁻³	1,0457·10 ³	3,4859·10 ⁻⁶	2,9534·10 ²	22,194
24,035	1,9010·10 ⁻³	1,5716·10 ¹⁴	1,7462·10 ⁻³	1,0579·10 ³	3,5266·10 ⁻⁶	2,9537·10 ²	22,224
28,554	2,2255·10 ⁻³	1,8398·10 ¹⁴	2,0443·10 ⁻³	1,0699·10 ³	3,5665·10 ⁻⁶	2,9540·10 ²	22,259
32,984	2,6234·10 ⁻³	2,1689·10 ¹⁴	2,4098·10 ⁻³	1,0817·10 ³	3,6056·10 ⁻⁶	2,9545·10 ²	22,302
37,326	3,1160·10 ⁻³	2,5761·10 ¹⁴	2,8623·10 ⁻³	1,0932·10 ³	3,6440·10 ⁻⁶	2,9550·10 ²	22,355
41,585	3,7326·10 ⁻³	3,0858·10 ¹⁴	3,4287·10 ⁻³	1,1045·10 ³	3,6816·10 ⁻⁶	2,9557·10 ²	22,421
45,762	4,5152·10 ⁻³	3,7328·10 ¹⁴	4,1476·10 ⁻³	1,1155·10 ³	3,7185·10 ⁻⁶	2,9565·10 ²	22,504

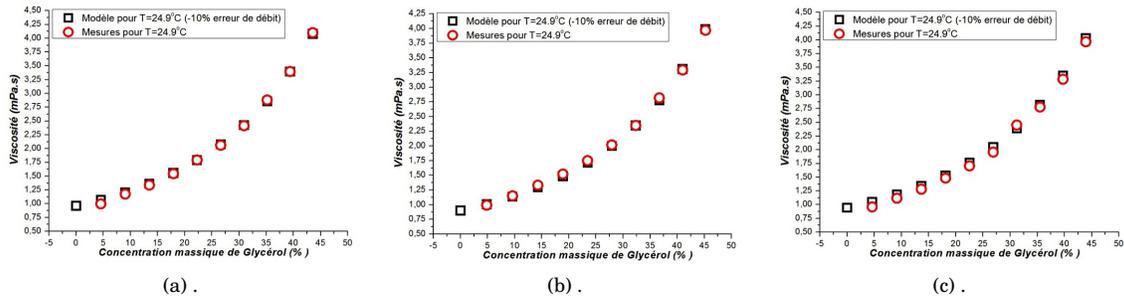


FIGURE 4.24 – Comparaison des tendances de l'évolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol au cours de expériences réalisées à différentes température. La courbe du modèle mathématique est représentative de la viscosité avec une erreur de 10% dans le débit.

Afin de confirmer ces hypothétiques sources d'erreur, de nouvelles mesures expérimentales seront réalisées prochainement. Au vu de la nature de cet écart entre les valeurs théoriques et mesurées, nous restons convaincu que l'association du micromélangeur au microrhéomètre permet de délivrer une mesure fiable de la viscosité d'un mélange de deux fluides et que cette source d'erreur n'est liée qu'à un élément extérieur à l'expérience.

4.5.2 Mesures à pression contrôlée.

Tout comme pour les expériences à pression contrôlée réalisées dans la section 3.4.1, nous allons remplacer l'un des deux poussettes- seringues par le système de liquide sous pression (voir figure 4.25). L'objectif est d'envoyer de l'eau DI avec un débit régressif tout en injectant en parallèle (à l'aide d'une pousse-seringue) le mélange de base 80% glycérol wt/wt 20% eau DI à débit constant (10 μ L/min). De cette façon, nous recueillons en sortie du rhéomètre un mélange dont la viscosité est en tout point de mesure différente. A partir d'une analyse des données complémentaire par rapport à celle utilisée pour le mélange PIB et hexadécane, nous pouvons déduire l'évolution de la viscosité en fonction de la concentration du glycérol au cours de l'expérience.

Les résultats obtenus lors de nos expériences n'ont pas révélé un comportement de la viscosité en fonction de la concentration semblable à nos attentes. Le détail de la méthodologie et des résultats est présenté dans la section **Perspectives**. Au vu de l'approximation de la viscosité du mélange eau-glycérol en fonction de la concentration de glycérol, nous avons soulevé l'hypothèse que le mélange eau-glycérol n'est jamais parvenu jusqu'au rhéomètre, et que la viscosité mesurée ne correspond

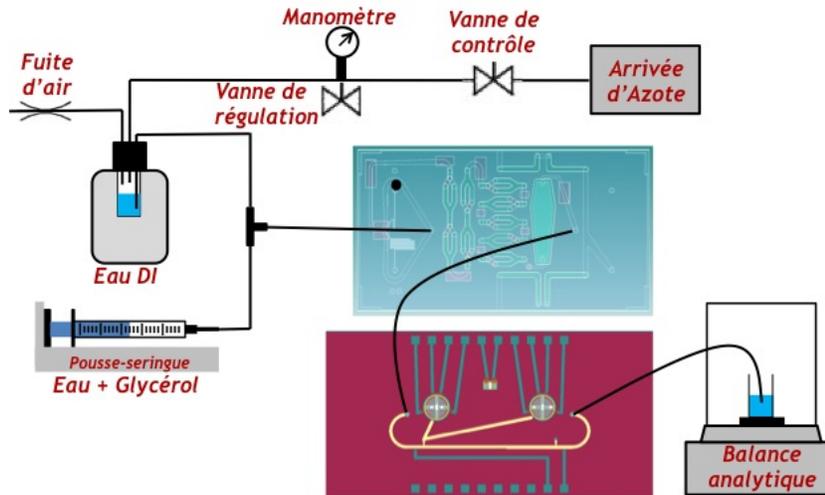


FIGURE 4.25 – Protocole expérimental pour la mesure à pression contrôlée.

finalement qu'à celle de l'eau injectée sous pression. Dans le cas où cette hypothèse s'avère être correcte, plusieurs explications peuvent être à l'origine de ce phénomène :

- Pour chaque expérience on commence par injecter le mélange eau-glycérol avec le pousse-seringue à un débit de $10\mu L/min$ afin de s'assurer que le mélange parvienne jusqu'au T avant d'injecter l'eau DI sous pression. Il est donc envisageable que le temps d'injection du mélange au début de l'expérience été peut être trop faible pour que le mélange injecté par le pousse-seringue n'ait le temps d'arriver jusqu'au T et que la mesure de viscosité n'ait été appliquée qu'à de l'eau.
- On peut aussi supposer que la pression trop élevée dans le système lors de l'envoi de l'eau DI peut avoir empêché le mélange eau-glycérol de circuler dans le capillaire connecté au T .

De même que pour le protocole à débit contrôlé, de nouvelles mesures seront réalisées prochainement afin de valider l'hypothèse de la mesure d'eau DI seule. Une solution sera alors envisagée pour palier à ce problème qui reste là encore mineur, ne remettant en aucun cas la fiabilité des deux dispositifs utilisés.

4.6 Conclusion

Au cours de ce chapitre nous avons exploré un champ d'application du microrhéomètre à partir duquel nous avons mesuré la viscosité variable d'un fluide générée à partir d'un micromélangeur.

Ce micromélangeur entre dans la catégorie des dispositifs dits passifs car il ne nécessite aucune source d'énergie extérieure pour réaliser le mélange. Basé sur la technique de séparation puis de re-combinaison du liquide par des cellules de laminage, la surface de diffusion se retrouve diminuée ce qui favorise la qualité du mélange et diminue le temps nécessaire pour que le mélange soit achevé.

Nous avons procédé à la caractérisation de ce système en évaluant dans un premier temps son efficacité en le soumettant à des mélanges de fluides (eau et glycérol) avec un suivi du mélange par un traceur fluorescent (fluorescéine). Après avoir validé ses performances avec de l'eau, nous avons injecté du glycérol dans la phase contenant initialement que de l'eau afin d'observer l'impact de la viscosité sur la qualité du mélange. Il s'est avéré que le mélange s'effectuait avec moins d'aisance, ce qui nous a suggéré de rajouter un T en entrée du système pour permettre au mélange de s'effectuer

partiellement avant même d'avoir atteint l'entrée du dispositif. La comparaison entre les résultats avant et après ajout du T ont montré une amélioration dans le mélange, obtenant ainsi des résultats en terme de fluorescence quasiment identique à ceux du mélange préparé manuellement.

Au vu des performances du micromélangeur, nous avons retiré la fluorescéine et avons commencé les mesures de viscosité à l'aide du microrhéomètre. Nous avons employé les deux méthodes d'envoi contrôlé du fluide utilisées aux cours des expériences avec les fluides newtoniens et non-newtoniens. Conservant un débit total constant de $200\mu L/min$ les débits des deux pousses-seringues (eau DI et mélange 80% glycérol wt/wt 20% eau DI) ont permis de faire varier la concentration de glycérol dans la solution finale, modifiant ainsi la viscosité. Les valeurs relevées par le microrhéomètre ont montré une bonne correspondance avec les résultats attendus avec cependant une erreur systématique de l'ordre de 8%. Nous avons démontré que cet écart entre les valeurs théoriques et expérimentales ne provient pas d'un échauffement thermique du fluide lors de son passage dans les canaux, mais qu'une source de chaleur externe augmentant la température du liquide de $3^{\circ}C$ peut être à l'origine de cet écart. Par ailleurs, un mauvais renseignement du diamètre intérieur de la seringue au pousse-seringue peut avoir faussé les débits et avoir influencé la concentration de glycérol dans le mélange. De nouvelles mesures expérimentales seront réalisées dans un futur proche afin de vérifier ces hypothèses de sources d'erreur et de valider l'exactitude des données transmises par le rhéomètre. La seconde méthode d'envoi (pression contrôlée) s'est avérée peu concluante en terme de relevés de la viscosité en fonction de la concentration de glycérol, où la tendance des courbes et les valeurs de viscosité approximées n'étaient pas en adéquation avec celles escomptées. Malgré des modifications apportées au protocole expérimental et analytique, l'origine précise de l'erreur n'a cependant pas pu être identifiée. L'hypothèse la plus vraisemblable permettant de justifier les résultats obtenus soulèverait le fait que le mélange eau-glycérol n'a pas été injecté dans le rhéomètre et que la mesure de viscosité ne reflèterait que celle de l'eau injectée avec le système sous pression. Là encore, de nouvelles mesures expérimentales seront réalisées dans un futur proche afin de valider cette hypothèse et pouvoir corriger ce problème.

L'ensemble des résultats présentés au cours de ce chapitre restent très encourageants notamment en terme d'association du micromélangeur et du microrhéomètre. L'union entre ces deux dispositifs permet en effet de pouvoir mesurer la viscosité d'un mélange de deux fluides (non connue) en employant un volume total de quelques mL , ce qui représente un intérêt majeure en terme de coût et de temps dans les études liées à ce domaine dans les secteurs académiques et industriels.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Conclusion générale

Le travail réalisé au cours de cette thèse traite des moyens mis en œuvre dans la réalisation d'un microsystème conçu afin de créer et d'étudier *in-situ* des fluides complexes.

Nous avons en premier lieu réalisé un microgénérateur de mousses et d'émulsions permettant de produire des dispersions stables et monodisperses. Ce générateur s'inscrit dans la catégorie des *micro channel emulsification array*, technique de production possédant l'avantage de contrôler de manière indépendante la fréquence de production et la taille des bulles/gouttes créées en modifiant les débits de la phase continue et de la phase dispersée. Notre générateur propose la particularité de conserver les dispersions à l'intérieur d'un canal de sortie avant de rejeter la production. Deux géométries ont été conçues afin d'observer l'évolution d'une mousse/émulsion au cours du temps dans une géométrie confinée, l'une pourvue d'un canal de sortie droit et la seconde adoptant une forme fractale. Le générateur Fractal a montré dans le cas de production de bulles/gouttes de meilleurs résultats en terme de coefficient de variation. En effet, grâce à sa géométrie propice à une meilleure évacuation, nous avons constaté moins de contact entre les bulles/gouttes ce qui diminue considérablement les phénomènes de vieillissement. Nous avons pu observer avec ce dispositif un CV de l'ordre de 1% en sortie de production et de 3% en sortie de dispositif aussi bien avec les mousses qu'avec les émulsions. Nous avons par la suite réalisé un générateur à dimensions variables, dans lequel les longueurs de chaque site de production sont augmentées afin d'observer l'impact des paramètres géométriques sur la production. Ce système nous a aidé à développer un modèle mathématique semi-empirique de prédiction du volume d'une bulle en fonction de la pression imposée en tenant compte des paramètres liés à la production d'une bulle dans le cas d'un pincement de l'interface gaz-liquide.

Après avoir contrôlé l'ensemble des paramètres expérimentaux pour produire des mousses/émulsions monodisperses, nous avons concentré nos efforts sur la réalisation d'un microrhéomètre basé sur l'utilisation d'un transducteur MEMS. Utilisant le principe de la mesure de la perte de charge le long d'un canal rectangulaire par le biais d'une jauge de pression piezorésistive, ce capteur a pour fonction d'étudier la rhéologie de fluides en fonction de la réponse de la jauge qui permet notamment d'obtenir les courbes d'écoulement des liquides mais également dans les études à venir, de détecter la présence de bulles/gouttes et autres vésicules et d'en étudier la nature. Nous avons introduit lors de la caractérisation de ce dispositif un ensemble de procédures à respecter avant chaque première utilisation d'un microrhéomètre (pré-remplissage, détermination du coefficient de calibration). Au cours de nos expériences, nous avons employé deux techniques d'envoi contrôlé du fluide, la première assurée par un pousse-seringue (débit contrôlé) et la seconde par un système de coussin d'air sous pression (pression contrôlée). Nous avons choisi de mettre en place cette seconde méthode de pression contrôlée afin de corriger le défaut du capteur que nous avons pu constater au cours des expériences à débits contrôlés, à savoir sa résolution insuffisante pour pouvoir observer les contraintes à très faibles taux de cisaillement. Ce nouveau protocole expérimental nous a conduit à définir un modèle mathématique permettant d'approximer les courbes de débits et de tension mesurées afin de pouvoir déterminer la viscosité en fonction du taux de cisaillement en tout point, et ce même à très faibles débits. Les résultats ont démontré la réponse qualitative du rhéomètre est

en adéquation avec les résultats théoriques escomptés aussi bien dans le cas de fluides newtoniens que non-newtoniens. Les mesures quantitatives restent cependant moins précises.

Encouragés par ces résultats, et afin de soumettre le rhéomètre à un nouveau champs d'application, nous avons décidé de l'utiliser afin de mesurer la viscosité de différents mélanges eau-glycérol produits à partir d'un micromélangeur. Classé parmi les mélangeurs passifs, ce dispositif utilise la méthode de séparation et de re-combinaison du mélange afin d'augmenter la surface de diffusion et ainsi de réduire le temps nécessaire pour que le mélange s'effectue dans sa totalité. Nous avons pu dans un premier temps valider l'efficacité de ce mélangeur. Les résultats concluants nous ont permis de passer à l'étape de mélange de fluides visqueux que nous avons injecté directement dans le rhéomètre en employant les deux méthodes d'envoi contrôlé utilisées dans nos précédentes expériences. La méthode par débit contrôlé a su montré l'efficacité du micromélangeur en terme de qualité du mélange mais également celle du microrhéomètre dont les mesures de viscosités ont été proches des valeurs attendues. Un écart de 8% par rapport aux valeurs attendues a cependant été mesuré. Cet écart systématique peut être soit lié à l'effet d'une source de chaleur externe réhaussant la température du fluide de 3°C, soit à erreur dans la valeur du débit imposé par le second pousse-seringue, faussant les concentrations de glycérol dans la solution finale. Les prochaines expériences à venir confirmeront ces hypothèses et permettront de pallier à cette erreur. Quant aux résultats avec la méthode par pression contrôlée, ils se sont avérés éloignés des tendances attendues, et ont soulevé l'éventualité d'un défaut dans l'envoi du mélange eau-glycérol. Là encore, de nouvelles expériences permettront que confirmer notre hypothèse quant au fait que le mélange ne parvienne pas jusqu'au rhéomètre. Une modification du protocole expérimental permettra de résoudre ce problème et de valider notre expérience. L'ensemble des résultats obtenus dans cette étude restent donc très encourageants et prometteurs dans le domaine de la caractérisation de fluide à viscosité variable.

En conclusion, nous avons réalisé deux système de création et de caractérisation de fluides complexes dont les performances se situent à l'état de l'art. Nous avons ouvert le champs d'application du rhéomètre à la mesure de viscosité d'un mélange de fluides généré à partir d'un micromélangeur et dont les premiers résultats sont extrêmement encourageants. La phase finale du projet, à savoir l'union du microgénérateur et du microrhéomètre, a vu le jour dans une première version du système. Pour la deuxième version étudiée les performances n'ont cependant pas été à la hauteur de nos espérances (voir la section Perspectives). Les travaux à venir demeurent porteurs de résultats novateurs, ouvrant des perspectives intéressantes dans l'étude des fluides complexes en milieux confinés.

Perspectives

L'étude présentée dans le chapitre 2 sur la production de mousses et d'émulsions à partir d'un générateur à réseau de microcanaux nous a permis de maîtriser l'ensemble des paramètres requis afin d'obtenir des dispersions stables et monodisperses. Nous avons ensuite réalisé et caractérisé le microrhéomètre (chapitre 3) en le soumettant à des mesures de viscosités de fluides newtoniens et non-newtoniens à forts taux de cisaillement, dont les résultats été en adéquation avec nos prédictions.

Nous avons par la suite entrepris la réalisation d'un dispositif combinant la génération de mousse/émulsion et le rhéomètre permettant à la fois la création et l'étude *in situ* de fluides complexes. Partant du même procédé de fabrication que le rhéomètre, nous avons essayé d'intégrer générateur et rhéomètre en rajoutant un site de production de dispersions en entrée du dispositif (figure 4.26a), lequel a été muni de peignes à l'entrée du canal de la phase dispersée afin de filtrer d'éventuelles particules présentes dans le fluide injecté (figure 4.26b).

Une fois réalisé, nous avons tenté de produire des dispersions en utilisant les mêmes paramètres expérimentaux que ceux dont nous nous étions servi lors de la stabilisation des mousses/émulsions.

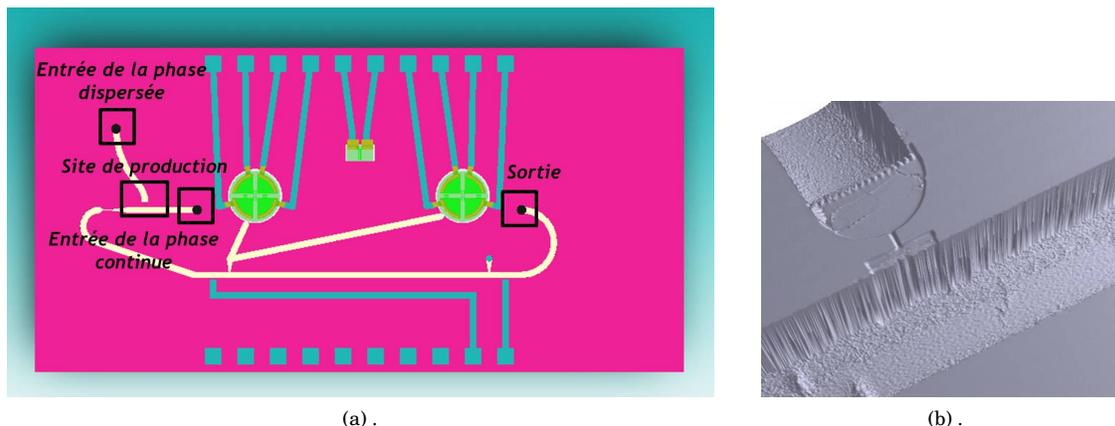


FIGURE 4.26 – **a.** : Modèle 3D du rhéomètre à générateur de dispersions intégré. **b.** : Photographie du site de production de dispersions (issu du profilomètre Veeco).

Production de mousses

Le protocole expérimental est en tout point similaire à celui présenté dans le chapitre 2. On utilisera comme phase dispersée du dodécane et comme phase dispersée de l'azote. Les débits et pression de chacune des deux phases ne sont pas fixés au départ, on cherchera simplement dans un premier temps à observer la production de bulles en sortie de canal.

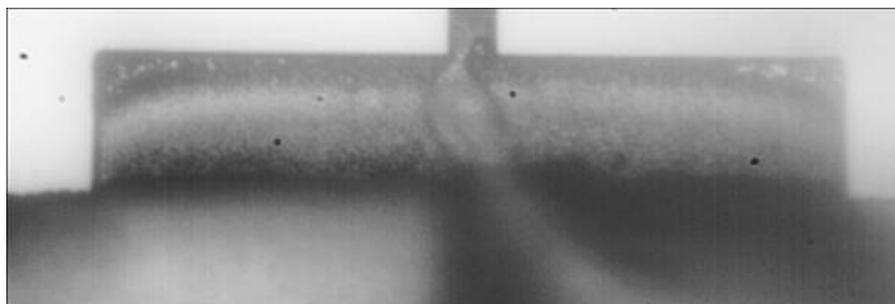


FIGURE 4.27 – dodécane et azote.

La figure 4.27 montre la production instable de mousse avec ce générateur. En effet, la pression de l'azote nécessaire pour pouvoir produire est située aux alentours de 0.8Bar et provoque cette crêpe 2D en forme de bougie, typique d'une pression trop élevée pour produire de façon contrôlée. Ceci résulte en un amas de gaz dans le canal de sortie, ne formant aucune bulle. Si l'on tente de diminuer la pression (en deçà de 0.8Bar), la production s'arrête instantanément. La production de mousse n'est pas concluante, on se propose alors de tester le générateur pour produire des émulsions.

Production d'émulsions

De même que précédemment (chapitre 2), les conditions expérimentales sont identiques. On choisira lors des expériences plusieurs fluides utilisés dans les expériences précédentes.

Dodécane - eau DI

On choisira comme phase dispersée de l'eau DI et comme phase continue du dodécane. Là encore, les débits sont imposés dans un premier temps de manière aléatoire pour tenter d'obtenir une émulsion stable.

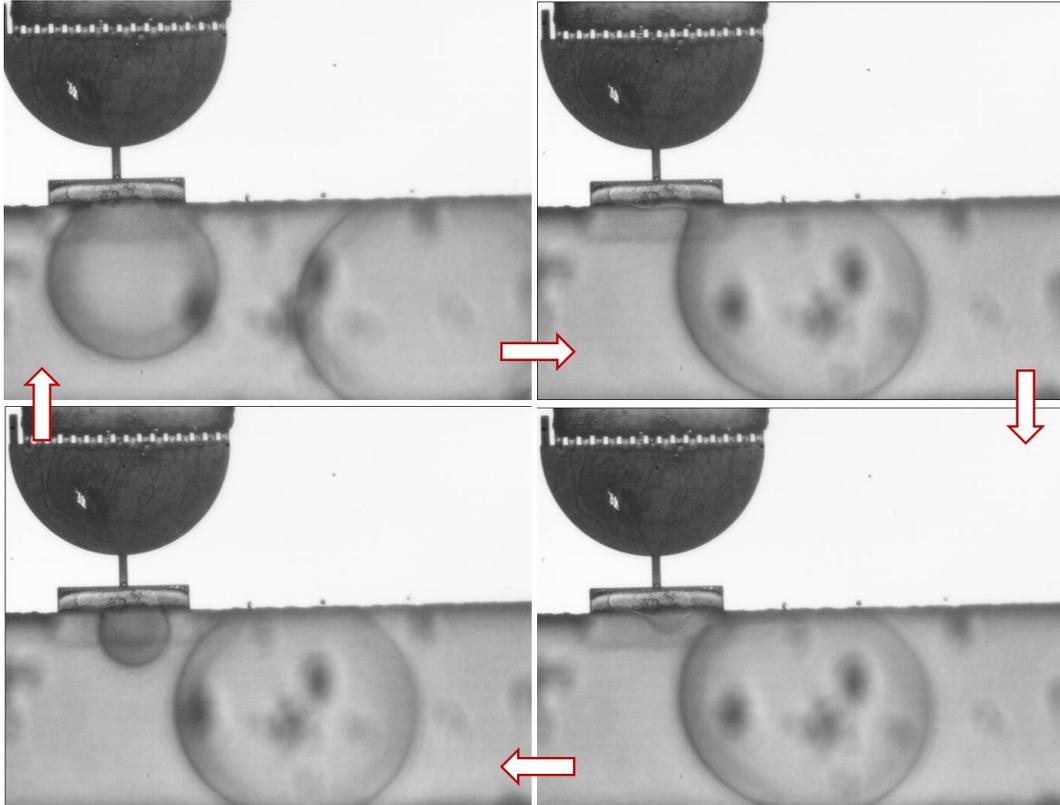


FIGURE 4.28 – dodécane et eau DI.

Lors de cette expérience on constate que quelque soit le débit de la phase dispersée et de la phase continue, la crête 2D envahit toute la terrasse et les gouttes générées sont largement plus grosses celles créées lors des précédentes expériences.

Dodécane - eau DI SDS

Dans cette expérience, on rajoute du SDS à la phase continue. Les débits ne sont toujours pas fixés, pour pouvoir être ajustés au besoin afin de produire une émulsion stable.

Là encore, le même phénomène que l'expérience précédente se produit. On peut très clairement observer sur la dernière image de la figure 4.29 que la terrasse est totalement ensevelie de dodécane débordant même dans le canal de production.

Au final, nous avons fabriqué un dispositif permettant de générer et de caractériser des fluides complexes *in situ* en intégrant à la fois le générateur de dispersions et le microrhéomètre. L'utilisation du microgénérateur a montré plusieurs points défailants au niveau de la fabrication de mousses et d'émulsions ne permettant pas une production adéquate pour être étudiée par le capteur. Plusieurs

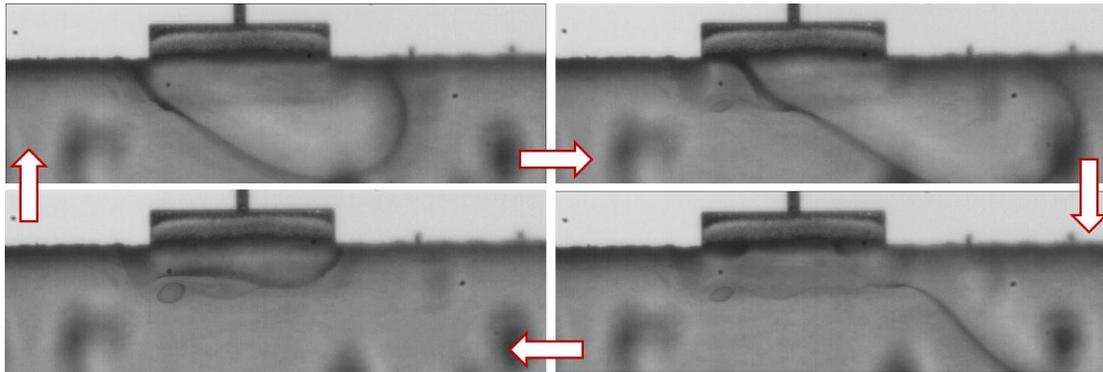


FIGURE 4.29 – Dodécane et 1% wt/wt SDS - eau DI.

hypothèses ont alors été soulevées pour comprendre pourquoi ce générateur ne fonctionne pas correctement.

Des défauts de gravures (figure 4.30) peuvent empêcher le bon fonctionnement du mécanisme de production.

Le design de ce générateur n'est peut être pas optimisé :

- Une gravure en forme de triangle sur le bord de la terrasse (comme celle présente sur la géométrie "Variable") peut faciliter la génération d'une bulle/goutte
- Une forme évasée en sortie du canal de production peut maintenir davantage la phase dispersée de façon l'empêcher de s'étaler sur toute la longueur de la terrasse.
- Le réservoir au niveau des peignes est un problème lors de la génération de bulle car la pression nécessaire pour remplir cet espace mort doit être relativement élevée (0.8Bar environ), ce qui entraîne une production instable dès que l'interface gaz/liquide arrive dans le microcanal de production.

Veeco 3-Dimensional Interactive Display

Surface Stats:

Ra: 26.53 μm

Rq: 31.44 μm

Rt: 81.62 μm

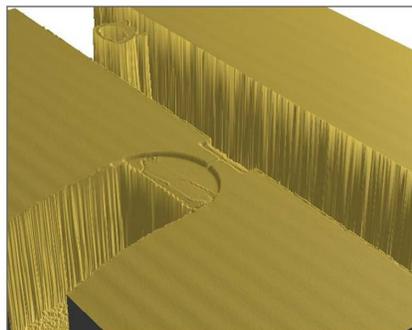
Measurement Info:

Magnification: 5.04

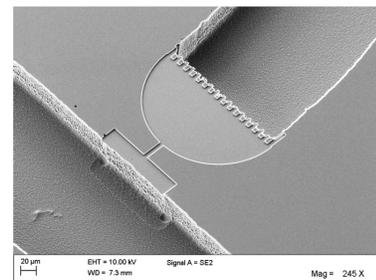
Measurement Mode: VSI

Sampling: 1.96 μm

Array Size: 640 X 480



(a) .



(b) .

FIGURE 4.30 – **a.** : Image 3D du site de génération de mousse/émulsion (obtenu avec le profilomètre Veeco). **b.** : Photographie du site de production de dispersions (obtenue au MEB).

Les rares productions relativement stables ont été obtenues avec du dodécane et de l'eau DI et ont

tout de même permis de mettre en avant l'avantage de l'amincissement du canal (figure 4.31a) en vue de diriger les dispersions au centre du canal principal du capteur (figure 4.31b).

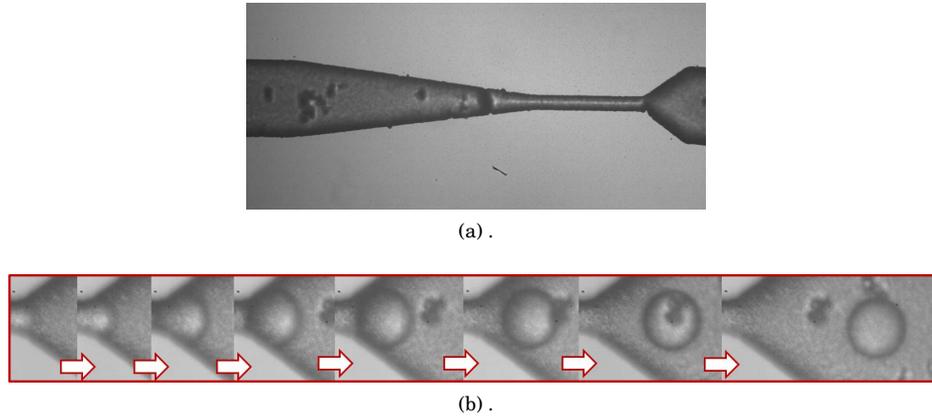


FIGURE 4.31 – **a.** : Canal de sortie du générateur relié au canal principal du capteur. **b.** : Observation d'une goutte passant par le canal de sortie.

Parmi les travaux à venir, un nouveau design du générateur intégré pourrait être envisagé en partant sur un modèle proche du schéma de la figure 4.32.

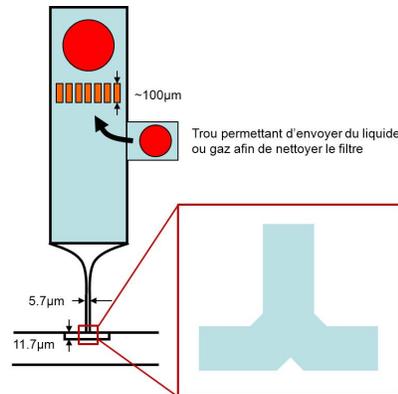


FIGURE 4.32 – Suggestion d'un nouveau design pour le générateur intégré.

Le réservoir en forme de demi-cercle sera remplacé au profit d'un canal droit dont l'entrée sera filtrée par des peignes de $100\mu\text{m}$ de longueur. Une éventuelle entrée proche des filtres permettrait un nettoyage rapide et peu contraignant en envoyant un fluide ou du gaz. Le canal droit de l'entrée sera ensuite aminci pour arriver sur le canal de la phase dispersée dont la largeur restera inchangée ($5.7\mu\text{m}$), la terrasse sera réduite de longueur pour éviter le phénomène d'étalement observé à plusieurs reprises, et enfin, un motif triangulaire sera gravé sur la terrasse (comme pour la géométrie "Variable") de façon à mieux contrôler la génération de dispersions.

Mesure de viscosité d'un mélange eau-glycérol à concentration variable

Nous avons présenté dans la section 4.5.2 le protocole expérimental permettant de réaliser un mélange eau-glycérol en envoyant une solution de base à débit constant et parallèlement de l'eauDI

avec un système à pression contrôlée. Nous présentons ici le protocole analytique et les résultats obtenus dans le cadre de cette expérience :

① : Déterminer à l'aide de la fonction de régression (utilisée au cours des expériences dans la section 4.5.1 et dont les données sont issues de [87]) la valeur de la densité du mélange 80% glycérol wt/wt 20% à la température de l'expérience.

② : Déterminer l'évolution de la concentration massique du glycérol au cours de la mesure (figure 4.33a). Le débit du mélange initial (envoyé par le pousse seringue) restera figé pendant toutes les expériences à $10\mu L/min$. Déterminer la concentration du mélange en tout point de mesure sachant que sa concentration massique est de 80% glycérol wt/wt 20% eau DI et que le débit massique est constant du mélange (obtenu après avoir déterminé la densité du mélange à la température de l'expérience) :

$$C_{mélange} = \frac{C_{mix-init} \cdot \Phi_{mas-mix-init}}{\Phi_{mas-mix-total}} \quad (4.5)$$

avec $C_{mix-init}$ la concentration massique de glycérol de la solution de base (80% glycérol wt/wt 20% eau DI), $\Phi_{mas-mix-init}$ le débit massique constant de la solution de base (obtenu à partir du débit constant de $10\mu L/min$ et de la densité de la solution de base à la température de l'expérience) et $\Phi_{mas-mix-total}$ le débit massique total mesuré par la balance analytique (comprenant le débit massique de l'eau envoyée sous pression et le débit massique du mélange de base envoyé par le pousse seringue).

③ : Le modèle d'interpolation choisi pour approximer les courbes de poids et de tension au cours des expériences avec le mélange de polyisobutylène et d'hexadécane dans la section 3.4.2 semble moins approprié pour ces expériences. Nous avons de nouveau effectué une étude quantitative afin de trouver un modèle d'interpolation ayant le meilleur coefficient de régression avec les courbes de poids et de tension de la jauge pour le mélange eau-glycérol. Le modèle mathématique 4.6 s'est avéré être le plus en adéquation avec les courbes de poids et de tension de la jauge obtenues. La nature de cette fonction ne s'apparente plus à une somme de deux exponentielles comme le modèle utilisé en section 3.4.2, mais à une courbe sigmoïdale à quatre paramètres variables. Cette fonction se définit par :

$$y(t) = \left(\frac{A_1 - A_2}{1 + \exp\left(\frac{t - x_0}{\tau}\right)} \right) + A_2 \quad (4.6)$$

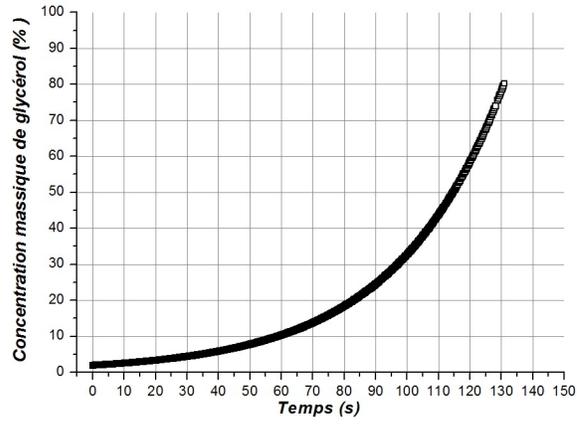
Avec A_1 la valeur initiale, A_2 la valeur finale, x_0 le centre de la courbe et τ la constante de temps.

④ : Obtenir à partir de l'équation 4.6 l'approximation du poids (figure 4.33b), puis déterminer l'approximation du débit massique à partir de la dérivée de l'équation 4.6 (figure 4.33c).

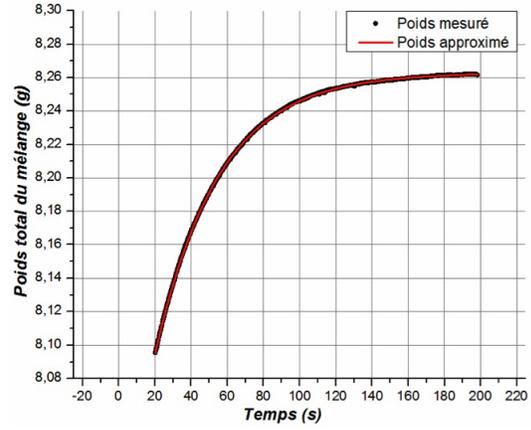
⑤ : Obtenir à partir de l'équation 4.6 l'approximation de la tension dont les paramètres permettent toujours de bénéficier de la tension à taux de caillement nul (figure 4.33d).

Procéder à la même analyse des données utilisées aux cours des expériences précédentes point par point (relativiser la tension, convertir à l'aide du coefficient de calibration la différence de tension en perte de charge) afin de déterminer la viscosité en tous points à l'aide de l'équation ???. La figure 4.33e représente l'évolution de la viscosité en fonction de la concentration de glycérol au cours de l'expérience.

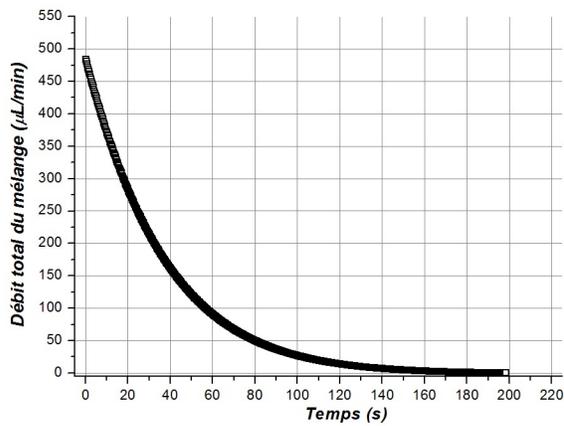
A la vue de ces données, nous pouvons noter que la courbe de viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol ne suit pas la tendance escomptée et que les valeurs de la viscosité



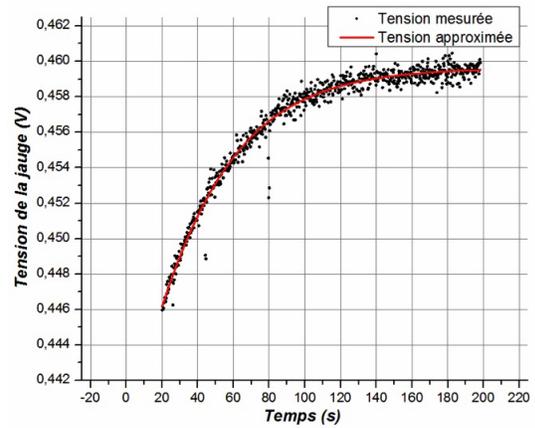
(a) .



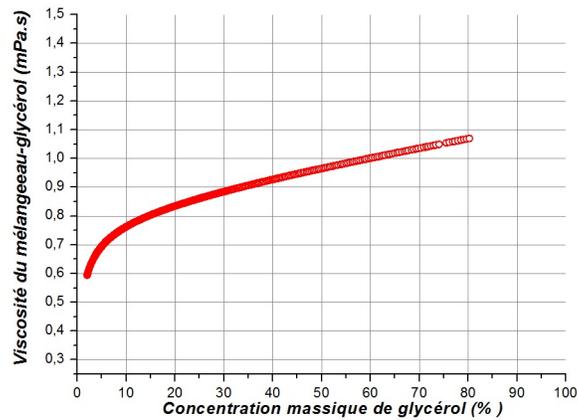
(b) .



(c) .



(d) .



(e) .

FIGURE 4.33 – Evolution temporelle de la concentration massique de glycérol (a.), du débit (b.) et de la tension (c.). d. : Evolution de la viscosité du mélange en fonction de la concentration de glycérol.

ne correspondent pas avec les valeurs théoriques. Néanmoins les autres courbes sont révélatrices des tendances de chacun des paramètres au cours de l'expérience et permettent de valider le travail d'analyse et d'approximation réalisé en amont.

Afin de comprendre l'origine de ce problème nous avons choisi de refaire l'expérience en n'injectant que l'eau DI, c'est à dire en coupant simplement l'envoi du mélange par le pousse-seringue. Les résultats ont montré une viscosité constante aux alentours de $1mPa.s$ validant ainsi le protocole d'analyse et d'approximation employé pour les mesures à viscosité variables.

Dans la section 4.5.2, nous avons émis l'hypothèse que la mesure de viscosité ne s'est appliquée qu'à l'eau DI injectée par le système sous pression. Nous avons suggéré plusieurs explications pouvant être à l'origine de ce phénomène en soulignant notamment le fait que la pression est trop élevée pour permettre au mélange de circuler dans le capillaire jusqu'au T ou encore que le temps d'attente pour que le mélange parvienne jusqu'au T est trop court.

Des mesures complémentaires seront effectuées prochainement afin de valider cette hypothèse et permettre de trouver une solution afin de pallier à ce problème.

Autres perspectives

Re-vérifier les débits imposés par les pousset-seringues ainsi que les diamètres intérieurs des seringues en verre pour les expériences de mesure de viscosité à débit contrôlé en fonction de la concentration de glycérol.

Poursuivre également les travaux de rhéologie en approfondissant les mesures à l'aide des géométries du canal principal du rhéomètre à constriction sinusoïdale en employant des fluides avec des particules. L'une des premières expériences pourraient concerner la mesure de la fréquence d'oscillation de ces particules en les injectant dans les deux géométries de canaux sinusoïdaux. Une simulation via la modélisation 3D du canal principal pourrait servir de référence en terme de comportement de la bulle/goutte/particule se déplaçant le long de ce canal.

ELÉMENTS DE PRÉCISION - CAPTEUR DE PRESSION

A.1 Capteurs piezorésistif - Principe et théorie

Les capteurs piezorésistifs apparaissent sous différentes formes avec des techniques de fabrications diverses et variées [89]-[90] avec des applications allant de la détection de cellules à l'aide de poutres encastrées [91]-[92], en passant par des accéléromètres [93], ou encore des capteurs de pressions pour des applications expérimentales [94]-[95], médicales [96], pour la mesure de température et d'humidité [97].

Dans notre cas, plusieurs études recensent différentes techniques de réalisations d'un capteur de pression sur Silicium [88], [98], [99], [100]. La conception de base, généralement employée pour la fabrication de capteur de pression piezorésistif, est représentée Figure A.1.

Il existe plusieurs géométries pour réaliser un capteur de pression piezorésistif (Figure A.2a) allant de la forme en spirale, en passant par des motifs en étoile, et bien sûr, le motif en serpent.

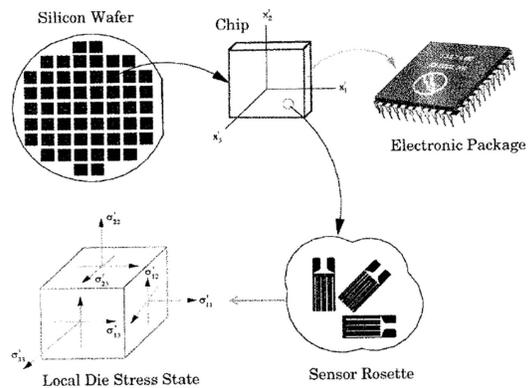


FIGURE A.1 – Schéma de principe de conception d'un capteur de pression piezorésistif [88].

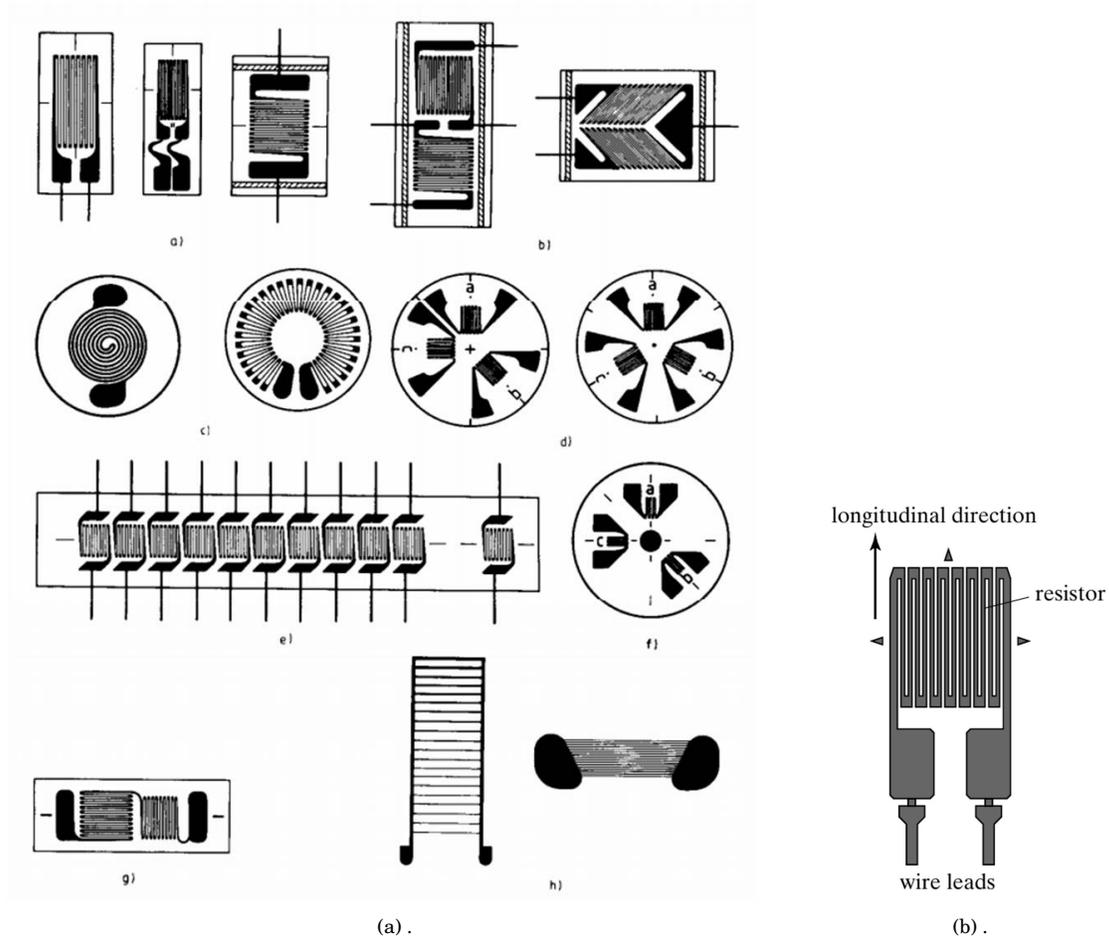


FIGURE A.2 – **a.** : Différentes géométries de capteur de pression [101]. **b.** : Capteur de pression couramment utilisé de type serpentin [79].

Le motif en serpentin, représenté Figure A.2b, est le plus souvent utilisé pour la réalisation de ce type de capteur et est appelé de Rosette [88] lorsque le nombre de serpentins est au moins de trois et sont disposés en forme de cercle. Cette géométrie permet en effet d'avoir une meilleure sensibilité qu'avec un seul élément résistif comme indiqué Figure A.3 et est couramment utilisé dans les capteurs de pression [102]-[99]-[103], mais peut également servir pour des applications autres, telle que la localisation de source acoustique [104].

Le principe d'un capteur piezorésistif se base sur la variation de la résistance lorsqu'une contrainte lui est appliquée. Si l'on considère une résistance de longueur L et de surface w^2 (section transversale) comme indiqué Figure A.3, la relation qui définit la résistance est donnée par :

$$R = \rho \frac{L}{w^2} \quad (\text{A.1})$$

où ρ correspond à la résistivité du matériau. Lorsqu'une force est appliquée longitudinalement, la résistance va se déformer et s'étirer. Les variations de la résistance ainsi que l'étirement vont évoluer de manière proportionnelle par la relation suivante :

$$\frac{\Delta R}{R} = G \cdot \frac{\Delta L}{L} \quad (\text{A.2})$$

Le coefficient G est alors appelé facteur piezorésistif de jauge et varie selon le type de jauge et selon le matériau utilisé. De façon plus explicite, l'équation A.2 peut être écrite sous une forme plus générale :

$$\frac{\frac{\Delta R}{R}}{\frac{\Delta L}{L}} = \frac{\Delta R}{R \cdot \epsilon} \quad (\text{A.3})$$

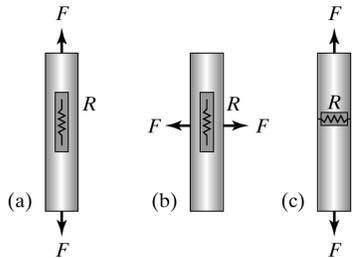


FIGURE A.4 – **a.** : La composante longitudinale est dominante. **b. et c.** : La composante transversale est dominante. [79]

L'Equation A.3 permet ainsi de mettre en évidence le terme ϵ correspondant aux contraintes. Ces contraintes peuvent être identifiées dans deux cas de figure : lorsque les variations de la résistance sont provoquées par un étirement longitudinal et/ou transversal. On peut alors écrire que pour toute contrainte, la variation de la résistance est donnée par la relation [79] :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta R}{R} &= \left(\frac{\Delta R}{R} \right)_{longitudinal} + \left(\frac{\Delta R}{R} \right)_{transversal} \\ &= G_{longitudinal} \cdot \sigma_{longitudinal} + G_{transversal} \cdot \sigma_{transversal} \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

où σ correspond à la composante de contrainte qui peut être tantôt positive dans le cas d'une extensibilité ou tantôt négative dans le cas d'une compressibilité.

Comme le montre l'équation A.5, l'orientation de la résistance est donc capitale dans la détermination de ces paramètres lorsqu'une contrainte est appliquée. Plusieurs configurations de piezorésistances sont possibles en fonction de positionnement, modifiant ainsi la réponse du le capteur. Ces configurations sont représentés Figure A.4.

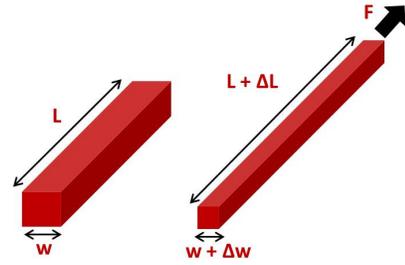


FIGURE A.3 – Schéma de principe d'une résistance. Mise en évidence du facteur de jauge lorsque la résistance est soumise à une elongation due à une force F .

Ainsi lorsqu'une contrainte mécanique est imposée à un élément piezorésistif, ce dernier va subir des déformations qu'il est possible de quantifier en analysant un petit élément de volume (Figure A.5). L'analyse qualitative qui suit s'applique dans le cas du Silicium à structure cristalline simple avec les axes x , y et z orientés dans la direction $\langle 100 \rangle$.

Les trois composantes de contraintes relatives à la normale sont donc notés σ_{xx} , σ_{yy} , σ_{zz} et les contraintes tangentielles sont notées τ_{xy} , τ_{xz} , τ_{zy} (avec $\tau_{xy}=\tau_{yx}$, $\tau_{xz}=\tau_{zx}$ et $\tau_{zy}=\tau_{zy}$). La matrice des tenseurs s'exprime alors comme suit :

$$[\sigma] = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \tau_{xy} & \tau_{xz} \\ \tau_{yx} & \sigma_{yy} & \tau_{yz} \\ \tau_{zx} & \tau_{zy} & \sigma_{zz} \end{bmatrix}$$

Plus généralement, les contraintes sont représentées sous la forme d'un vecteur :

$$[\sigma] = \begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \tau_{yz} \\ \tau_{xz} \\ \tau_{xy} \end{bmatrix}$$

Associé aux composantes du tenseur piezorésistif (matrice $[\pi]$), on retrouve ainsi la relation générale entre la résistivité et la contrainte (avec ρ_0 la résistivité pour une contrainte nulle) [88] :

$$\begin{bmatrix} \Delta\rho_{11}/\rho_0 \\ \Delta\rho_{22}/\rho_0 \\ \Delta\rho_{33}/\rho_0 \\ \Delta\rho_{23}/\rho_0 \\ \Delta\rho_{13}/\rho_0 \\ \Delta\rho_{12}/\rho_0 \end{bmatrix} = [\pi] \cdot [\sigma] = \begin{bmatrix} \pi_{11} & \pi_{12} & \pi_{12} & 0 & 0 & 0 \\ \pi_{12} & \pi_{11} & \pi_{12} & 0 & 0 & 0 \\ \pi_{12} & \pi_{12} & \pi_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \pi_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \pi_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \pi_{44} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \tau_{yz} \\ \tau_{xz} \\ \tau_{xy} \end{bmatrix}$$

Le Silicium mono cristallin connaît donc depuis plusieurs années un franc succès en terme d'utilisation pour la fabrication de piezorésistances. Les techniques de dopages [90] permettent d'obtenir un facteur piezorésistif de jauge très intéressant. De plus les propriétés mécaniques et l'abondance sur Terre en font un matériau très appréciable tant sur le plan physique que sur le plan rentabilité.

Le seul inconvénient vient du fait de sa limitation dans des applications nécessitant des opérations à fortes températures [105].

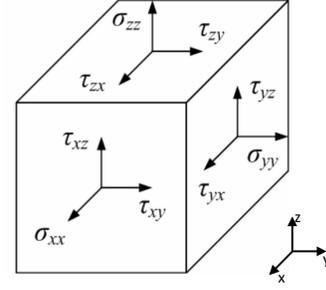


FIGURE A.5 – *Element de volume piezorésistif.*

A.2 Matériaux adaptés aux capteurs

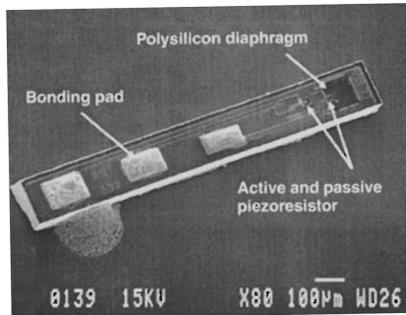


FIGURE A.6 – Photographie d'un capteur de pression utilisant une membrane en PolySilicium utilisé pour la mesure de pression cardiovasculaire [106].

Le Silicium est un matériau qui offre de nombreux avantages pour la réalisation de capteurs piezorésistifs. Cependant, il peut présenter des aspects mécaniques intrinsèques à sa constitution qui peuvent être plus complexes et moins appropriés que d'autres matériaux en terme de réalisation de capteur. D'autres matériaux ont été exploités par le passé et ont montré de très bons résultats.

Prenons le cas du PolySilicium. Plusieurs travaux comparant l'influence du PolySilicium sur les performances d'un capteur piezorésistif par rapport à du Silicium dans un environnement changeant (température, humidité) ont permis de mettre en évidence une nette amélioration des résultats en terme de fiabilité et de précision [107]. D'autres études purement théoriques proposent une analyse sur les propriétés sur PolySilicium [108]-[109] notamment sur le comportement du facteur de jauge piezorésistif en fonction de l'orientation du réseau polycristalin et de la température.

Le PolySilicium est très utilisé dans la fabrication de capteurs piezorésistif [110], l'instrumentation thermique [111] ainsi que dans les circuits intégrés en électronique et autre processeur. De nombreuses études sur les capteurs de pression à base de PolySilicium ont également été réalisées [112] et ont permis de mettre en avant la non-dépendance du facteur piezorésistif de la résistance en fonction de la température et de la concentration de dopage en Bore [113].

Les travaux théoriques de P.J. French et de G.R. Evans sur les capteurs de pressions en PolySilicium, ont permis de définir plusieurs modèles mathématiques décrivant les variations des facteurs piezorésistifs de jauge lors de contraintes dues à la présence d'un champ électrique [114] mais également de définir des modèles analytiques pouvant prédire le comportement du coefficient de température de la résistance et du coefficient piezorésistif de jauge en fonction de la concentration du dopage [115]. Les capteurs de pression piezorésistifs utilisant le PolySilicium sont utilisés dans plusieurs domaines d'applications comme la mesure de pression cardiovasculaire [106] (Figure A.6), mais aussi dans la mesure d'une chute de pression le long d'un canal micro fluïdique permettant de déterminer la viscosité d'un fluide [19].

Les travaux de V. Mosser et al. proposent une étude large et complète sur l'utilisation du PolySilicium dans les capteurs de pression [112]. Ces études mettent en avant les avantages que présente ce matériau notamment en terme de reproductibilité de procédés technologiques, d'utilisation à haute température (de l'ordre de 200°C) ou encore un effet piezorésistif très intéressant et une quasi linéarité des variations de l'offset (différence de tension mesurée en sortie de dispositif à pression atmosphérique et à pression élevée), de résistance et de sensibilité à la pression lors d'un changement de température.

Le PolySilicium est également utilisé dans la réalisation de jauge pour les capteurs de pression. Il présente en effet de nombreux avantages comme une bonne contrôlabilité de l'épaisseur de la membrane, la tolérance à une couche de diélectrique permettant une meilleure isolation et convient pour des applications à hautes températures contrairement au Silicium mono cristallin [105].

A.2.1 Jauge de contraintes

A.2.1.1 Application du pont de Wheatstone - Positionnement des résistances

Afin de mesurer les variations de résistance, le montage électrique du pont de Wheatstone est très généralement employé, car il permet de détecter de très faibles variations de résistances tout en atténuant la sensibilité au bruit.

Il est utilisé dans plusieurs types de micro capteurs tels que des capteurs de champs magnétiques [116], des capteurs de flux thermiques (les résistances étant alors remplacées par des thermistors) [117], des viscosimètres pour des système de chromatographie [118], des magnétorhéomètres qui, lorsqu'ils sont soumis à un champs électromagnétique, montrent une déflexion de la membrane contrôlée par un pont de Wheatstone [119], ou encore dans des ASIC (Applicaton Specific Integrated Circuit) permettant grâce à un circuit de contrôle, de maintenir les oscillations d'un capteur résonant [120].

En outre, de nombreux travaux de simulation à l'aide d'outils informatiques ont été réalisés, et ont permis d'étudier le comportement de capteur de pression soumis à différentes perturbations [121] ou encore de réaliser un modèle de pont de Wheatstone amélioré (gamme de tension réduite pour des contraintes similaires, gamme de linéarité accrue) [122].

Dans le cas d'un pont de Wheatstone appliqué à une membrane, le positionnement des résistances est crucial et a fait l'objet de plusieurs études théoriques [123] par le passé.

Prenons le cas d'une membrane de type carré avec des éléments pizeorésistifs en PolySilicium (Figure A.7a). Lorsqu'une pression est appliquée sur la membrane, la contrainte va se répandre radialement

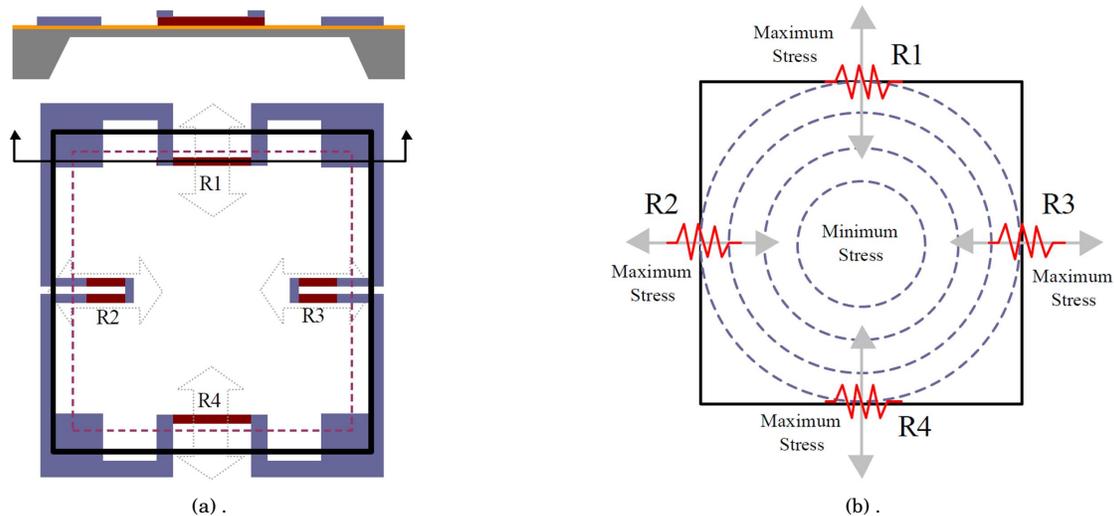


FIGURE A.7 – **a.** : Capteur de pression utilisant un pont de Wheatstone. **b.** : Distribution des contraintes sur la membrane carrée [124].

du centre vers l'extérieur comme indiqué sur la Figure A.7b. Sous l'effet de cette contrainte, le couple de résistances R_1, R_4 va se déformer de façon transversale tandis que le couple de résistances R_2, R_3 va se déformer de façon longitudinale.

Toutefois, selon le matériau utilisé (Silicium ou PolySilicium), le positionnement des résistances peut varier.

Dans le cas du Silicium, les propriétés du réseau mono cristallin sont généralement utilisées dans le positionnement des résistances de façon à pouvoir utiliser les composantes longitudinales et transversales pour déterminer les variations du pont [125] (Figure A.8).

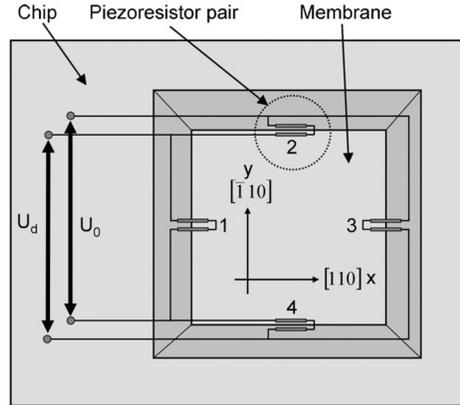


FIGURE A.8 – Pont de Wheatstone de piezorésistances connectés à une membrane. Le positionnement des piezorésistances se fait selon l'axe $\langle 110 \rangle$ du Silicium [125].

La relation entre les variations des résistances et les contraintes s'exprime alors par :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{\sigma_x}{2} (\pi_{11} + \pi_{12} + \pi_{44}) + \frac{\sigma_y}{2} (\pi_{11} + \pi_{12} - \pi_{44}) \quad (\text{A.5})$$

Dans le cas du PolySilicium, sa structure ne permettant pas d'observer aussi facilement qu'avec le Silicium les variations des composantes transversales, il est plus intéressant de positionner les quatre piezorésistances dans une configuration longitudinale, perpendiculaire aux champs de contraintes. De cette manière les variations du pont seront relatives aux étirements et aux compression des éléments piezorésistifs.

Ainsi en positionnant un couple de résistances aux bords de la membrane (étirement) et un couple de résistances proche du centre (compression) on obtient un pont de sensibilité (Figure A.9).

A.2.1.2 Déformation d'une membrane

Lorsqu'une pression est appliquée sur le capteur, la membrane va se déformer, faisant ainsi varier les éléments piezorésistifs du pont qui la constitue. Le champs de contraintes qui va s'appliquer peut se répartir de plusieurs façons qui sont relatives à la gravure en face arrière de la membrane lors de la fabrication du capteur.

Généralement, la face arrière est gravée sur la zone où les contraintes seront maximales, c'est à dire là où sont positionnés les éléments piezorésistifs (Figure A.10) [126]-[79].

D'autres travaux ont été réalisés sur des membrane gravées par partie sur la face arrière et ont permis d'observer par simulation, la répartition des contraintes sur ce type de gravure (Figure A.11) [127].

A.2.2 Mesure de température intégrée

Lors de la réalisation de ce type de capteur, il est couramment ajouté, à proximité du pont, une résistance en tout point similaire à celles utilisées pour la mesure différentielle. Lors des mesures, elle ne subira aucune déformation, elle servira simplement de référence pour la mesure de température. En effet, les variations de températures induisent de légers changements au niveau des

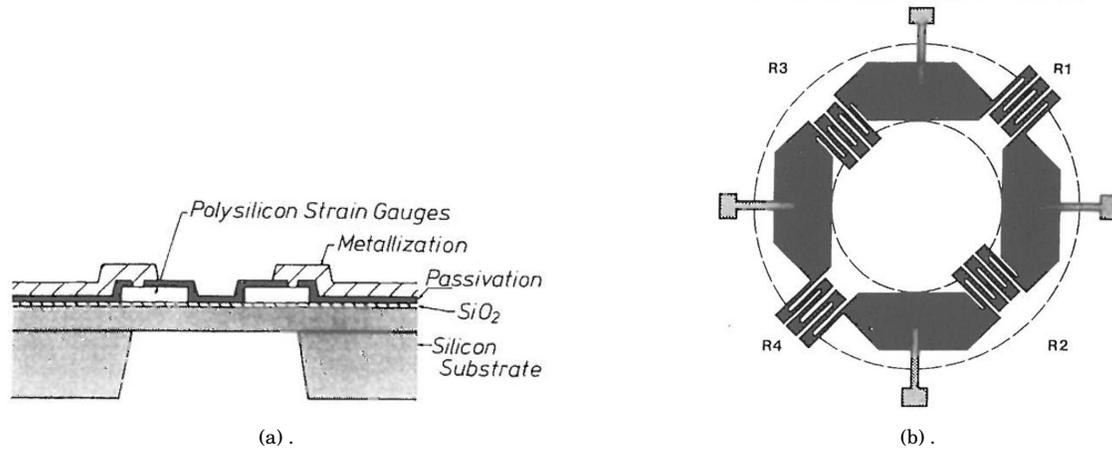


FIGURE A.9 – **a.** : *Vue en coupe d'un capteur de pression piezorésistif utilisant une membrane en PolySilicium.* **b.** : *Circuit équivalent électrique du capteur [113].*

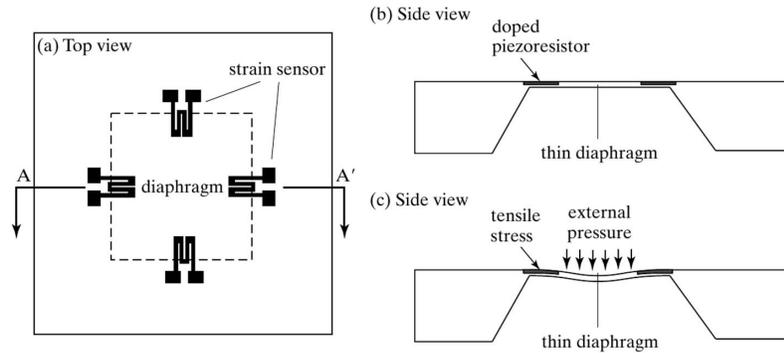


FIGURE A.10 – *Comportement du capteur sous l'effet d'une pression. a.* : *Vue du dessus. b. et c.* : *Vue de côté. [79]*

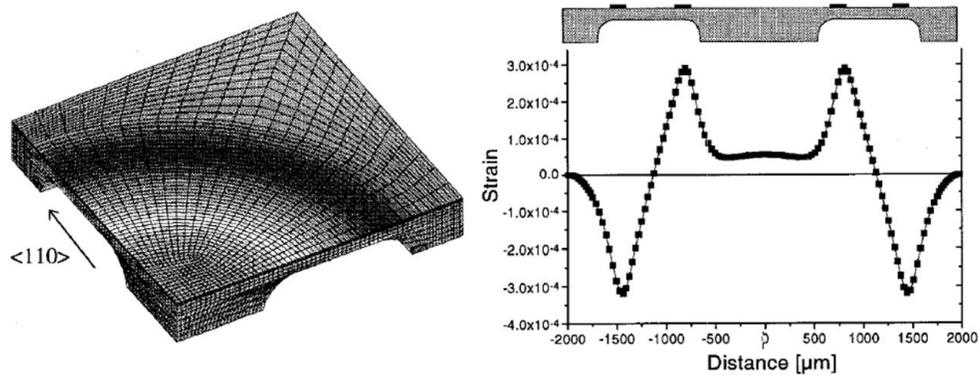


FIGURE A.11 – *Simulation de la distribution des contraintes [127].*

mesures. L'utilisation de cette résistance permet de comprendre l'évolution des mesures en fonction de la température.

Plusieurs études se sont intéressées à l'impact de la température sur les variations du coefficient en température de la résistance, de l'offset et de la sensibilité [113], les variations du signal en sortie du capteur [128]-[112]. D'autres travaux proposent des études sur les variations du coefficient de température de résistivité, du coefficient de température du facteur de jauge longitudinal et transversal [109] dans le cas d'un capteur de pression en PolySilicium basé sur le pont de Wheatstone.

PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DE LA JAUGE PIEZORÉSISTIVE

Le principe de la jauge de contrainte (illustrée Figure B.1b) repose sur la variation des résistances qui traduit, en l'occurrence, la pression appliquée sur la membrane. On rappelle Figure B.1a le schéma électrique d'un montage en pont de Wheatstone avec ses relations élémentaires :

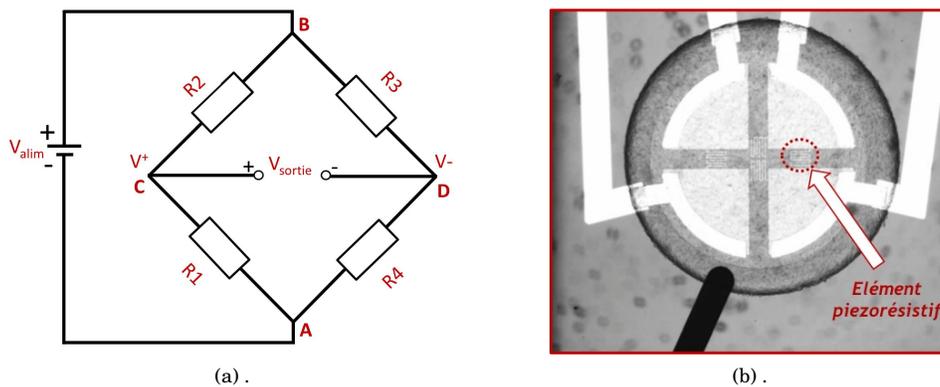


FIGURE B.1 – **a.** : Schéma électrique du pont de Wheatstone. **b.** : Microphotographie de la jauge de pression totale constituée d'un pont de piezorésistances.

avec $V_{Alim} = V_B - V_A$ et $V_{sortie} = V_C - V_D$ où V_C et V_D sont respectivement définies par :

$$V_C = \frac{V_A R_1 + V_B R_2}{R_1 + R_2}$$

$$V_D = \frac{V_A R_3 + V_B R_4}{R_3 + R_4}$$

La tension différentielle de sortie s'écrit alors :

$$V_{sortie} = \frac{R_2 R_4 + R_1 R_3}{(R_1 + R_2)(R_3 + R_4)} \cdot V_{alim} \quad (B.1)$$

Dans le cas où un seul élément du montage est sensible, c'est à dire qu'une seule résistance (R_2 par exemple) va indiquer une variation relative dR/R notée κ qui se traduit par $R_2 = R(1 + \kappa)$, on obtient alors en sortie $V_{sortie} = V_{alim} \frac{\kappa}{4}$.

Pour le cas d'un montage à deux éléments sensibles, l'un traduisant une résistance en extension ($R(1 + \kappa)$) et l'autre une résistance en compression ($R(1 - \kappa)$), la tension différentielle de sortie se simplifie à $V_{sortie} = V_{alim} \frac{\kappa}{2}$.

Enfin, le montage en pont complet où $R_2 = R_4 = R(1 + \kappa)$ (résistances d'extension) et $R_1 = R_3 = R(1 - \kappa)$ (résistances de compression), la tension de sortie est alors égale à $V_{sortie} = V_{alim} \kappa$ et délivre une tension plus importante que dans les montages précédents, et permet donc d'avoir une meilleure lecture des variations de la jauge.

Dans les montages en pont complet de capteurs de pression, les résistances sont généralement positionnées de la même manière. Lorsqu'une pression est appliquée sur la jauge, le couple de résistances R_2 et R_4 , placé au bord de la jauge, va s'étirer tandis que le couple R_1 et R_3 , placé au centre de la jauge, va se retrouver en compression.

TABLE DES FIGURES

0.1	<i>Présentation des tâches réalisées au cours de cette thèse pour la génération et la caractérisation de fluides complexes.</i>	16
1.1	<i>Goutte formée par l'envoi de fluide à travers une seringue.</i>	19
1.2	<i>Hergé, "On a marché sur la lune".</i>	19
1.3	<i>Fluide incompressible soumis à un cisaillement plan.</i>	19
1.4	<i>Profil de vitesse d'un fluide incompressible dans une géométrie cylindrique.</i>	21
1.5	<i>Déformation de la membrane sous l'effet d'une pression de charge uniforme.</i>	22
1.6	<i>Exemple de réseau de canaux microfluidiques.</i>	24
1.7	<i>a. : Schéma de principe du mûrissement (diffusion de gaz des petites bulles vers les plus grosses). b. : Evolution d'une mousse au cours du temps (images obtenues avec un microscope optique Leica DMI 5000M au cours des expériences réalisées avec le microgénérateur de dispersions).</i>	25
1.8	<i>a. : Schéma de principe de la dissolution (diffusion de gaz dans le liquide). b. : Diffusion du gaz présent dans une bulle jusqu'à la disparition de cette bulle (images obtenues avec un microscope optique Leica DMI 5000M au cours des expériences réalisées avec le microgénérateur de dispersions).</i>	25
1.9	<i>Coalescence de bulles.</i>	26
1.10	<i>Schéma d'un micelle constitué de molécules de surfactant dans une phase aqueuse [29].</i>	26
1.11	<i>Schéma de la division des fluides.</i>	28
1.12	<i>Gain temporel du mélange en fonction du nombre de cellules de laminage.</i>	28
1.13	<i>Principe et application de la jonction en T. a. : Microphotographie d'une jonction en T avec la formation d'une goutte. [31]. b. : Utilisation de la jonction en T pour réaliser des mélanges rapides. [33].</i>	30
1.14	<i>Utilisation de la jonction en T en cascade pour diviser les gouttes mères en gouttes filles de diamètre moindre. [34]</i>	31
1.15	<i>Principe et application du flow-Focusing. a. : Microphotographies des étapes de fabrication de gouttes avec le flow-Focusing. [35]. b. : Flow-Focusing avec filament très long et stable pour générer de très petites bulles. [37].</i>	31
1.16	<i>Principe et application de la génération d'émulsion à partir d'un réseau de microcanaux. a. : Dispositif proposé par [46]. b. : Microchannel Emulsification Array) proposé par [17].</i>	32
1.17	<i>Génération de dispersions à partir d'un réseau de microcanaux avec une membrane asymétrique [39].</i>	33
1.18	<i>Viscosimètre capillaire dit d'Ostwald. [49]</i>	34
1.19	<i>Classification des rhéomètres conventionnels [50]</i>	35
1.20	<i>Rhéomètre rotatif à cellule de Couette. [51]</i>	35
1.21	<i>Schémas simplifiés des deux rhéomètres. a. : Rhéomètre plan-plan. [52]. b. : Rhéomètre cône-plan. [53].</i>	36
1.22	<i>a. : Schéma du système de cisaillement présenté par [56]. b. : Rhéomètre FMR (Flexure-based Microgap Rheometer) [57].</i>	37
1.23	<i>a. : Photographie de la plaque contenant le capteur de pression. b. : Schéma du positionnement des capteurs de pression sur le rhéomètre. [59]</i>	38
1.24	<i>Viscosimètre constitué de deux microcanaux "ouverts" et de deux chambres closes [60].</i>	38
1.25	<i>Micro photographie d'un rhéomètre basé sur un transducteur MEMS [19].</i>	39
1.26	<i>Schéma de principe du microrhéomètre VROC de RheoSense [52].</i>	39

1.27	a. : Schémas de principes de micromélangeurs actifs et passifs [66]. b. : Schéma de classification des micromélangeurs [65].	41
1.28	a. : Schéma de principe d'un mélangeur en forme de T [68]. b. : Microphotographie d'un mélangeur à flow-focusing [69].	42
1.29	a. : Vue en coupe d'une cellule de laminage séquentiel. b. Comparaison entre le canal droit et les cellules de laminage [70].	43
1.30	a. : Vue en coupe d'une cellule de laminage à séparation et re-combinaison. b. Respectivement de haut en bas, la trajectoire des deux fluides, vue en coupe selon la direction x , vue en coupe selon la direction y et schéma du parcours rotatif en 3D des lignes de courant [71].	43
1.31	a. Schémas représentant la circulation du fluide à l'intérieur de la goutte (flèches noires) dans le cas d'un mélange (efficace dans le cas où le colorant et l'eau sont séparés initialement verticalement (schéma de gauche), peu efficace lorsqu'ils sont initialement séparés horizontalement (schéma de droite)). b. : Création de gouttes de colorant avec de l'eau dans un canal droit [33]. c. Mélange des fluides à l'intérieur des gouttes dans un canal en serpentin [72].	44
1.32	a. : Schéma de principe d'un micro mélangeur à instabilité électrocinétique. b. Evolution du mélange au niveau de la chambre soumise au champs électrique. [73]	45
1.33	Schéma de la puce EWOD. Image droite haut : distribution du liquide fluorescent du réservoir R8. Image droite bas : séquence de mélange de deux fluides positionnés sur deux électrodes. [74].	45
2.1	Schémas simplifiés des deux dispositifs avec photographies prises au microscope électronique à balayage (MEB) illustrant les deux géométries du canal de sortie. a. : Géométrie "Focused". b. : Géométrie "Fractal".	49
2.2	Génération de dispersions au niveau de la terrasse. a. : Etapes de fabrication d'une bulle/goutte. b. : Micro photographie au niveau de la terrasse lors de la production d'une bulle.	49
2.3	a. : Microgénérateur à canal de sortie droite avec les nanoports positionnés. b. : Photographie du dispositif au niveau du canal de la phase continue (image réalisée au MEB).	50
2.4	Photographies de génération de dispersions avec le schéma de la procédure expérimental associé. a. : Génération d'émulsion. b. : Génération de mousse.	51
2.5	Sites d'observations pour la caractérisation de dispersions sur les deux géométries.	52
2.6	Diamètres moyens et fréquences de production pour la génération d'émulsion avec la géométrie "Focused". a. : Diamètres moyens des gouttes en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue. b. : Fréquences de production des gouttes par canal en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue.	53
2.7	Diamètres moyens et fréquences de production pour la génération d'émulsion avec la géométrie "Fractal". a. : Diamètres moyens des gouttes en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue. b. : Fréquences de production des gouttes en fonction du débit de la phase dispersée pour différents débits de la phase continue.	54
2.8	Analyse de la production d'émulsion avec les 2 dispositifs. a. : Comparaison de coefficient de variation entre les 2 géométries pour la production d'émulsion (Débits du C ₁₆ allant de 0.1 à 2 μ L/min et de 9 μ L/min pour l'eau DI). b. : Distribution de la taille des gouttes au niveau du canal de production et à la sortie de chaque dispositif pour les 2 géométries (le débit du C ₁₆ est de 0.1 μ L/min et celui de l'eau DI est de 5 μ L/min.	55
2.9	Analyse de la production de mousse avec les 2 dispositifs. a. : Distribution des diamètres des bulles pour la géométrie "Fractal" au niveau du canal de production et à la sortie du dispositif (Phase continue : eau DI 1 wt % SDS avec un débit de 56.6 μ L/min - Phase dispersée : N ₂ à une pression de 0.4bar). b. : Distribution des diamètres des bulles pour la géométrie "Focused" au niveau du canal de production et à la sortie du dispositif (Phase continue : SDS 1% wt eau DI avec un débit de 100 μ L/min - Phase dispersée : N ₂ à une pression de 0.6bar).	56
2.10	Comportement du diamètre moyen des bulles en fonction de la pression et du débit pour les 2 dispositifs. a. : Diamètre moyen des bulles au niveau du canal de production en fonction du débit de la phase continue pour une pression constante (0.6bar) avec différentes concentrations de glycérol de la phase continue (0-30-60% wt/wt). b. : Diamètre moyen des bulles au niveau du canal de production en fonction de la pression du gaz à débit constant de la phase continue : 50 μ L/min (SDS 1% wt/wt glycérol 0-30-60% wt/wt eau DI).	57

2.11	<i>Cycle de production d'une bulle (avec une profondeur de gravure des canaux de 2.5μm, une solution avec 60% de glycérol, une pression de N₂ de 0.5bar et un débit de la phase continue de 50μL/min.</i>	59
2.12	<i>Evolution du rayon de courbure lors de la fabrication d'une bulle au cours du temps. a. : Variation du rayon de courbure en fonction du temps. b. : Variation du rayon de courbure en fonction du temps normalisé par rapport à la période de production.</i>	60
2.13	<i>Analyse géométrique des phases ①-②-③ de la figure 2.11. a. : Schéma de principe du phénomène de pinch-off avec l'avancée du ménisque eau/gaz jusqu'au bord de la terrasse (vue en coupe du générateur). b. : Représentation schématique de l'étalement de la crêpe une fois arrivée au bord de la terrasse (au contact de la ligne de pinch-off).</i>	61
2.14	<i>Longueur du ménisque précédant le pincement ($L_{pinch-off}$) en fonction de la pression P pour les 3 concentrations de glycérol.</i>	62
2.15	<i>a. : Schéma simplifié de la géométrie "Variable" avec photo de la terrasse avec les différents motifs de gravure. b. : Photographie de la terrasse variable réalisée au MEB.</i>	62
2.16	<i>Dépendance de la largeur de la terrasse lors de l'étalement de la crêpe. Phénomène observé sur la géométrie "Variable". a. : Largeur de terrasse $l_t=14\mu$m). b. : Largeur de terrasse $l_t=12\mu$m). c. : Largeur de terrasse $l_t=8\mu$m).</i>	63
2.17	<i>Comparaison du cycle de création de bulle selon les sites de production. La phase continue est un mélange SDS 1% wt/wt eau DI - glycérol 50% wt/wt envoyée à 60μL/min. La phase dispersée est du N₂ envoyé à une pression de 0.42bar.</i>	64
2.18	<i>Evolution du volume des bulles en fonction de la pression, données recueillies sur le dispositif avec le réseau de microcanaux gravés à 2 μm. a. : Mesures expérimentales du volume des bulles en fonction de la pression pour trois concentrations de glycérol. b. : Volumes des bulles normalisés par rapport à la viscosité de chacune des solutions en fonction de la pression.</i>	64
2.19	<i>Evolution du volume des bulles (déduit par le modèle et mesuré expérimentalement) à différentes concentrations de glycérol. a. : Mesures expérimentales du volume des bulles en fonction de la pression pour les 3 solutions. b. : Volumes des bulles obtenus à partir du modèle mathématique en fonction du volume mesuré expérimentalement.</i>	66
3.1	<i>Schéma intégral de la puce avec le microrhéomètre.</i>	70
3.2	<i>Modèle des 3 géométries du canal principal. Image gauche : canal sinusoïdal avec une amplitude de 50μm et une longueur de périodicité λ de 500μm. Image centrale : canal droit-sinusoïdal-droit avec des sinusoides d'amplitude de 90μm et une longueur λ de 200μm. Image droite : canal droit.</i>	71
3.3	<i>Photographie du microrhéomètre (2cm x 1cm x 1mm).</i>	71
3.4	<i>Modèle 3D du rhéomètre (pas à l'échelle), avec w_3 la hauteur du canal principal, h_3 sa hauteur et L_3 sa longueur.</i>	72
3.5	<i>Modèle microfluidique du rhéomètre, avec Φ_{in} le débit total étant la somme de ϕ_{ch1} (le débit dans les deux canaux secondaires) et ϕ_{ch2} le débit dans le canal principal, R_{H1}, R_{H2} et R_{H3}, respectivement les résistances hydrodynamiques des deux canaux secondaires et du canal principal, C_{Hm} la capacité hydrodynamique de la membrane, P_1 et P_2 respectivement les pressions d'entrée et de sortie du dispositif et enfin P'_1 et P'_2 les pressions respectives au dessus et au dessous de la membrane.</i>	73
3.6	<i>Photographie du dispositif au niveau de la frontière entre l'oxyde et le dépôt de titane/platine.</i>	75
3.7	<i>Carte PCB fixée au support dédié au microscope (Vue de dessous).</i>	76
3.8	<i>Socle en aluminium dédié à la connectique microfluidique (vue de dessus).</i>	76
3.9	<i>Electronique de conditionnement : mesure de température avec la résistance RTD, connexion du capteur de pression à l'alimentation et à l'amplificateur AD620 (Analog Device), étage de filtrage en sortie de l'AD620, traitement des données via la carte d'acquisition NI USB 6259 (National Instrument).</i>	77
3.10	<i>a. : Augmentation de la précision de mesure des données grâce à l'effet du filtre passe bas en sortie de l'amplificateur. b. : Cycle de mesure avec un standard de viscosité (N10 - Paragon Scientific) avant l'amplificateur et l'étage de filtrage. c. : Cycle de mesure avec du N10 après l'étage de filtrage et l'amplification.</i>	78
3.11	<i>Interface de gestion de l'environnement relatif au rhéomètre.</i>	78

3.12	<i>Caractérisation de la résistance RTD pour les mesures de température sur puce. a. : Evolution de la tension de sortie associée au pont diviseur de mesure de température en fonction de la température. b. : Relation entre R_{RTD} et de la température.</i>	79
3.13	<i>Méthode de pré-remplissage du rhéomètre pour chaque première utilisation. Utilisation du pousse seringue PHD Ultra (Harvard Apparatus), et de la pompe à vide (Vacuumbrand).</i>	80
3.14	<i>a. : Cycle complet d'une mesure de viscosité pour un liquide newtonien. b. : Valeur du signal mesuré (moyenne des 100 derniers points de mesure) en fonction du débit - Différence de tension soustraite par rapport à la tension mesurée à débit nul.</i>	82
3.15	<i>Courbe de viscosité en fonction de la température des liquides newtoniens utilisés aux cours des expériences (données issues de la littérature). a. : Hexadécane. b. : Dodécane. c. : Eau DI. d. : Standard de viscosité N10. e. : Standard de viscosité N100. f. : Mélanges eau DI-glycérol à différentes concentrations.</i>	84
3.16	<i>Evolution du coefficient de calibration en fonction de la température (fluides utilisés répertoriés dans les tableaux 3.2 et 3.3). Coefficients moyens Rhéomètre1 : $3.7838.10^5$ et Rhéomètre2 : $4.7049.10^5$</i>	86
3.18	<i>Cylindre soumis à une pression extérieure P_o et à une pression intérieure P_i.</i>	88
3.17	<i>Equivalence électrique du circuit seringue-capillaire.</i>	88
3.19	<i>Influence de la viscosité du fluide sur le temps de réponse du système. a. : Cycle de mesure (inversé) avec du dodécane ($1.3mPa \cdot s$). b. : Cycle de mesure avec le standard de viscosité N10 ($14.4mPa \cdot s$). c. : Cycle de mesure (inversé) avec le standard de viscosité N100 ($206mPa \cdot s$).</i>	89
3.20	<i>Caractérisation du dodécane à une température de $22^{\circ}C$. a. : Contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour le dodécane. b. : Viscosité en fonction du taux de cisaillement. c. : Courbes de viscosités en fonction du taux de cisaillement du dodécane pour trois températures différentes.</i>	93
3.21	<i>Caractérisation du N10 à une température de $21.9^{\circ}C$. a. : Contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour le N10. b. : Viscosité en fonction du taux de cisaillement. c. : Courbes de viscosités en fonction du taux de cisaillement du N10 à températures différents.</i>	94
3.22	<i>Caractérisation du N100 à une température de $24.5^{\circ}C$. a. : Contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour le N100. b. : Viscosité en fonction du taux de cisaillement. c. : Courbes de viscosités en fonction du taux de cisaillement du N100 à températures différents.</i>	95
3.23	<i>Modèle Carreau-Yasuda décrivant l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C_{16} pour $T \approx 22.5^{\circ}C$</i>	97
3.24	<i>Analyse du comportement du mélange 25%PIB wt/wt C_{16} à une température de $22.5^{\circ}C$. a. : Détermination du n par le coefficient directeur de la droite. Dans le cas présent $n=0.7522$. b. : Evolution de la contrainte de cisaillement aux murs en fonction du taux de cisaillement au mur pour une température de $22.5^{\circ}C$. c. : Tendence de la viscosité en fonction du taux de cisaillement - Expérience et modèle pour $T=22.5^{\circ}C$.</i>	99
3.25	<i>Evolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C_{16} avec le Rhéomètre1. a. et b. : Expériences réalisées à une température de $23^{\circ}C$. c. : Expérience réalisée à $21.6^{\circ}C$.</i>	100
3.26	<i>Evolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C_{16} avec le Rhéomètre2. a. : Expérience réalisée à une température de $22.4^{\circ}C$. b. : Expérience réalisée à une température de $27.1^{\circ}C$.</i>	101
3.27	<i>Protocole expérimental pour la mesure à pression contrôlée.</i>	101
3.28	<i>Observation des valeurs non utilisées pour la régression. a. : Mesure du poids en fonction du temps. b. : Mesure de la tension en fonction du temps.</i>	102
3.29	<i>Approximation des données avec le modèle mathématique. a. : Mesure du poids en fonction du temps avec la régression ($R^2 = 0.99955$) et résidus du modèle pour le poids. b. : Mesure de la tension en fonction du temps avec la régression ($R^2 = 0.99964$) et résidus du modèle pour la tension.</i>	103
3.30	<i>Ensemble des courbes de régression pour chacune des mesures effectuées avec du dodécane à différentes températures.</i>	104

3.31	<i>Ensemble des données nécessaires à la détermination de la viscosité. a. : Evolution de la contrainte de cisaillement au mur en fonction du du taux de cisaillement au mur pour une température de 24.0°C. b. : Détermination du paramètre n (n=0,7578). c. : Evolution de la viscosité du mélange 25%PIB wt/wt C₁₆ en fonction du taux de cisaillement avec les valeurs expérimentales approximées avec le modèle mathématique pour une température de 24.0°C.</i>	105
3.32	<i>Evolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour le mélange 25%PIB wt/wt C₁₆ à différentes températures. a. : Expérience réalisée à 23.3°C avec n=0.776. b. : Expérience réalisée à 24.0°C avec n=0.7578. c. : Expérience réalisée à 25.5°C avec n=0.8378. d. : Expérience réalisée à 29.0°C avec n=0.7684.</i>	106
4.1	<i>Représentation schématique des étapes de fabrication pour la constitution d'une cellule de laminage (pas à l'échelle).</i>	110
4.2	<i>Modèle 3D du micromélangeur avec ses éléments principaux. a. : Modèle du micromélangeur avec ses fenêtres d'observation. Les images accolées à chaque fenêtre montrent l'évolution d'un mélange eau-fluorescéine au cours du temps. b. : Principaux organes du micromélangeur.</i>	111
4.3	<i>Procédure de séparation et de re-combinaison du fluide dans une cellule de laminage.</i>	112
4.4	<i>Résultat d'une expérience de mélange où chaque image est utilisée pour évaluer l'intensité lumineuse .</i>	113
4.5	<i>Evolution de l'intensité lumineuse en fonction de la concentration de fluorescéine. Equation de la droite : $I = 187.37.C + 0.066$</i>	114
4.6	<i>Protocole expérimental pour valider l'efficacité du mélange lorsque les deux fluides sont injectés à débit contrôlé dans le dispositif.</i>	115
4.7	<i>Comparaison des intensités relatives en fonction de la concentration de fluorescéine pour les expériences avec mélange réalisé par le mélangeur et manuellement.</i>	116
4.8	<i>Protocole expérimental pour la mesure de l'intensité d'une solution à base de glycérol et de fluorescéine.</i>	116
4.9	<i>Expérience réalisée pour mélange $e_{eau-glycérol}=20\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. a. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i. b. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.</i>	118
4.10	<i>Observation de l'évolution du mélange pour mélange $e_{eau-glycérol}=20\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : a. et T : c.) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : b. et T : d.).</i>	119
4.11	<i>Expérience réalisée pour mélange $e_{eau-glycérol}=50\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. a. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i. b. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.</i>	120
4.12	<i>Observation de l'évolution du mélange pour mélange $e_{eau-glycérol}=50\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : a. et T : c.) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : b. et T : d.).</i>	121
4.13	<i>Expérience réalisée pour mélange $e_{eau-glycérol}=100\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. a. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i. b. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.</i>	122
4.14	<i>Observation de l'évolution du mélange pour mélange $e_{eau-glycérol}=100\mu L/min$ et $Fluo=100\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : a. et T : c.) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : b. et T : d.).</i>	123
4.15	<i>Expérience réalisée pour mélange $e_{eau-glycérol}=100\mu L/min$ et $Fluo=50\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. a. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i. b. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.</i>	124
4.16	<i>Observation de l'évolution du mélange pour mélange $e_{eau-glycérol}=100\mu L/min$ et $Fluo=50\mu L/min$ avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing : a. et T : c.) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : b. et T : d.).</i>	125

4.17	<i>Expérience réalisée pour mélange_{eau-glycérol}=100μL/min et Fluo=20μL/min avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. a. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange m_i. b. : Evolution du mélange selon l'indice de mélange $m_{i-relat}$.</i>	126
4.18	<i>Observation de l'évolution du mélange pour mélange_{eau-glycérol}=100μL/min et Fluo=20μL/min avec les deux méthodes d'envoi des deux phases. Relevé des courbes d'intensité par fenêtres (flow-focusing a. et T c.) et comparaison de l'intensité en sortie de dispositif du mélange réalisé manuellement et in-situ (flow-focusing : b. et T : d.).</i>	127
4.19	<i>Comparaison des intensités avec le rajout du T en entrée du micromélangeur.</i>	128
4.20	<i>Comparaison des intensités relatives avec le rajout du T en entrée du micromélangeur.</i>	128
4.21	<i>Protocole expérimental avec les deux dispositifs. (On notera que l'entrée de la phase interne est bouchée pour empêcher le mélange de sortir).</i>	129
4.22	<i>Observation de l'évolution de la viscosité du mélange eau DI-glycérol en fonction de la concentration massique de glycérol et de la température. a. : Evolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol pour $t=22^{\circ}C$ ($\rho_{mélange}=1.2072g/mL$ et $\rho_{eauDI}=0.9539g/mL$). b. : Evolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol pour $t=22.8^{\circ}C$ ($\rho_{mélange}=1.2067g/mL$ et $\rho_{eauDI}=0.9359g/mL$). b. : Evolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol pour $t=24.9^{\circ}C$ ($\rho_{mélange}=1.2055g/mL$ et $\rho_{eauDI}=0.8914g/mL$).</i>	130
4.23	<i>Comparaison des tendances de l'évolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol au cours de expériences réalisées à différentes température. La courbe du modèle mathématique est représentative de la viscosité à une température rehaussée de $3^{\circ}C$.</i>	131
4.24	<i>Comparaison des tendances de l'évolution de la viscosité en fonction de la concentration massique de glycérol au cours de expériences réalisées à différentes température. La courbe du modèle mathématique est représentative de la viscosité avec une erreur de 10% dans le débit.</i>	132
4.25	<i>Protocole expérimental pour la mesure à pression contrôlée.</i>	133
4.26	<i>a. : Modèle 3D du rhéomètre à générateur de dispersions intégré. b. : Photographie du site de production de dispersions (issue du profilomètre Veeco).</i>	137
4.27	<i>dodécane et azote.</i>	137
4.28	<i>dodécane et eau DI.</i>	138
4.29	<i>Dodécane et 1% wt /wt SDS - eau DI.</i>	139
4.30	<i>a. : Image 3D du site de génération de mousse/émulsion (obtenu avec le profilomètre Veeco). b. : Photographie du site de production de dispersions (obtenue au MEB).</i>	139
4.31	<i>a. : Canal de sortie du générateur relié au canal principal du capteur. b. : Observation d'une goutte passant par le canal de sortie.</i>	140
4.32	<i>Suggestion d'un nouveau design pour le générateur intégré.</i>	140
4.33	<i>Evolution temporelle de la concentration massique de glycérol (a.), du débit (b.) et de la tension (c.). d. : Evolution de la viscosité du mélange en fonction de la concentration de glycérol.</i>	142
A.1	<i>Schéma de principe de conception d'un capteur de pression piezoresistif [88].</i>	145
A.2	<i>a. : Différentes géométries de capteur de pression [101]. b. : Capteur de pression couramment utilisé de type serpentin [79].</i>	146
A.3	<i>Schéma de principe d'une résistance. Mise en évidence du facteur de jauge lorsque la résistance est soumise à une elongation due à une force F.</i>	147
A.4	<i>a. : La composante longitudinale est dominante. b. et c. : La composante transversale est dominante. [79]</i>	147
A.5	<i>Element de volume pizeoresistif.</i>	148
A.6	<i>Photographie d'un capteur de pression utilisant une membrane en PolySilicium utilisé pour la mesure de pression cardiovasculaire [106].</i>	149
A.7	<i>a. : Capteur de pression utilisant un pont de Wheatstone. b. : Distribution des contraintes sur la membrane carrée [124].</i>	150
A.8	<i>Pont de Wheatstone de piezorésistances connectés à une membrane. Le positionnement des piezorésistances se fait selon l'axe $\langle 110 \rangle$ du Silicium [125].</i>	151
A.9	<i>a. : Vue en coupe d'un capteur de pression piezorésistif utilisant une membrane en PolySilicium. b. : Circuit équivalent électrique du capteur [113].</i>	152
A.10	<i>Comportement du capteur sous l'effet d'une pression. a. : Vue du dessus. b. et c. : Vue de côté. [79]</i>	152

A.11	<i>Simulation de la distribution des contraintes [127].</i>	152
B.1	<i>a. : Schéma électrique du pont de Wheatstone. b. : Microphotographie de la jauge de pression totale constituée d'un pont de piezorésistances.</i>	155

BIBLIOGRAPHIE

- [1] G. Whitesides, "The origins and the future of microfluidics," *Nature*, vol. 442, pp. 368–373, 2006.
- [2] H. Stone and S. Kim, "Microfluidics : basic issues, applications, and challenges," *American Institute of Chemical Engineers Journals*, vol. 47, pp. 1250–1254, 2001.
- [3] T. Franke and A. Wixforth, "Microfluidics for miniaturized laboratories on a chip," *ChemPhysChem*, vol. 9, pp. 2140 – 2156, 2008.
- [4] S. Sant et al., "Microfabrication technologies for oral drug delivery," *Advanced Drug Delivery Reviews*, vol. 64, pp. 496–507, 2012.
- [5] C. Huang et al., "Integrated microfluidic systems for automatic glucose sensing and insulin injection," *Sensors and Actuators B*, vol. 122, pp. 461–468, 2007.
- [6] W. Duncanson et al., "Microfluidic synthesis of advanced microparticles for encapsulation and controlled release," *Lab Chip*, vol. 12, pp. 2135–2145, 2012.
- [7] D. Weibel and G. Whitesides, "Applications of microfluidics in chemical biology," *Current Opinion in Chemical Biology*, vol. 10, pp. 584–591, 2006.
- [8] D. Breslauer, P. Lee, and L. Lee, "Microfluidics-based systems biology," *Molecular BioSystems*, vol. 2, pp. 97–112, 2006.
- [9] H. Andersson and A. van den Berg, "Microfabrication and microfluidics for tissue engineering : state of the art and future opportunities," *Lab Chip*, vol. 4, pp. 98–103, 2004.
- [10] K. Ohno, K. Tachikawa, and A. Menz, "Microfluidics : Applications for analytical purposes in chemistry and biochemistry," *Electrophoresis*, vol. 29, pp. 4443–4453, 2008.
- [11] S. Dutse and N. Yusof, "Microfluidics-based lab-on-chip systems in dna-based biosensing : an overview," *Sensors*, vol. 11, pp. 5754–5768, 2011.
- [12] Y. Zhang and P. Ozdemir, "Microfluidic dna amplification - a review," *Analytica Chimica Acta*, vol. 638, pp. 115–125, 2009.
- [13] S. Neethirajan et al., "Microfluidics for food, agriculture and biosystems industries," *Lab Chip*, vol. 11, pp. 1574–1586, 2011.
- [14] P. Nghe et al., "Microfluidics and complex fluids," *Lab Chip*, vol. 11, pp. 788–794, 2011.
- [15] R. Seemann, M. Brinkmann, T. Pfohl, and S. Herminghaus, "Droplet based microfluidics," *Report on Progress in Physics*, vol. 75, p. 016601, 2012.
- [16] H. Gu, M. H. G. Duits, and F. Mugele, "Droplets formation and merging in two-phase flow microfluidics," *International Journal of Molecular Sciences*, vol. 75, pp. 2572 – 2597, 2011.
- [17] S. Sugiura et al., "Interfacial tension driven monodispersed droplet formation from microfabricated channel array," *Langmuir*, vol. 17, pp. 5562–5566, 2001.

- [18] M. Stoffel et al., "Bubble production mechanism in a microfluidic foam generator," *Physical Review Letters*, vol. 108, p. 198302, 2012.
- [19] D. Angelescu et al., "Highly integrated microfluidic sensors," *Proceeding of SPIE*, vol. 6886, p. 688607, 2008.
- [20] D. Angelescu, *Highly Intergrated Microfluidics Designs*. Norwood, MA : Artec House, 2011.
- [21] P. Tabeling, *Introduction à la microfluidique*. Paris : Belin, 2003.
- [22] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. cois Graner, R. Höler, O. Pitois, F. Rouyer, and A. Saint-Jalmes, *Les mousses, structure et dynamique*. Paris : Belin, 2011.
- [23] D. B. Biesel, *Introduction à la microfluidique (Notions de cours)*. 2008.
- [24] S. Hénon, *Concepts Fondamentaux de la Physique - Matière Molle et Interfaces (Notions de cours)*. 2011.
- [25] D.J.Beebe, G.A.Mensing, and G.M.Walker, "Physics and applications of microfluidics in biology," *Annual Review of Biomedical Engineering*, vol. 4, pp. 261–286, 2002.
- [26] H. Stone, A. Stroock, and A. Adjari, "Engineering flows in small devices : Microfluidics toward a lab-on-a-chip," *Annual Review of Fluid Mechanics*, vol. 36, pp. 381–411, 2004.
- [27] T. Bourouina and J.-P. Grandchamp, "Modeling micropumps with electrical equivalent networks," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 6, pp. 398–404, 1996.
- [28] S. Timoshenko, *Résistance des matériaux vol.2*. Paris : Dunod, 1968.
- [29] M. Pasquali, "Gelation : Grow with the flow," *Nature Materials*, vol. 9, pp. 381–382, 2010.
- [30] L. Capretto et al., "Micromixing within microfluidic devices," *Topics in Current Chemistry*, vol. 304, pp. 27–68, 2011.
- [31] T. Nisisako, T. Torii, and T. Higuchi, "Droplet formation in a microchannel network," *Lab Chip*, vol. 2, pp. 24–26, 2002.
- [32] P. Garstecki et al., "Formation of droplets and bubbles in a microfluidic t-junction - scaling and mechanism of break-up," *Lab Chip*, vol. 6, pp. 437–446, 2006.
- [33] J.D.Tice, H.Song, and R. Ismagilov, "Formation of droplets and mixing in multiphase microfluidics at low values of the reynolds and the capillary numbers," *Langmuir*, vol. 19, pp. 9127–9133, 2003.
- [34] D. R. Link et al., "Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices," *Physical Review Letters*, vol. 92, p. 054503, 2004.
- [35] S. Anna, N. Bontoux, and H. Stone, "Formation of dispersions using flow focusing in microchannels," *Applied Physics Letters*, vol. 82, pp. 364–366, 2003.
- [36] P. Garstecki et al., "Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device," *Applied Physics Letters*, vol. 85, p. 2646, 2004.
- [37] E. Castro-Hernandez et al., "Microbubble generation in a co-flow device operated in a new regime," *Lab Chip*, vol. 11, p. 2023, 2011.
- [38] R. Lorenz et al., "Simultaneous generation of multiple aqueous droplets in a microfluidic device," *Anal. Chim. Acta*, vol. 630, pp. 124–130, 2008.
- [39] I. Kobayashi, S. Mukataka, and M. Nakajima, "Novel asymmetric through-hole array microfabricated on a silicon plate for formulating monodisperse emulsions," *Langmuir*, vol. 21, pp. 7629–7632, 2005.

- [40] V. Barbier, H. Willaime, and P. Tabeling, "Producing droplets in parallel microfluidic systems," *Physical Review E*, vol. 74, p. 046306, 2006.
- [41] M. Hashimoto et al., "Formation of bubbles and droplets in parallel, coupled flow-focusing geometries," *Small*, vol. 4, pp. 1795–1805, 2008.
- [42] M. Sullivan and H. Stone, "The role of feedback in microfluidic flow-focusing devices," *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, vol. 366, pp. 2131–2143, 2008.
- [43] S. Sugiura et al., "Characterization of spontaneous transformation-based droplet formation during microchannel emulsification," *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 106, pp. 9405–9409, 2002.
- [44] S. Sugiura, M. Nakajima, and M. Seki, "Prediction of droplet diameter for microchannel emulsification : prediction model for complicated microchannel geometries," *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 43, pp. 8233–8238, 2004.
- [45] I. Kobayashi, S. Mukataka, and M. Nakajima, "Production of monodisperse oil-in-water emulsions using a large silicon straight-through microchannel plate," *Ind. Eng. Chem. Res.*, vol. 44, pp. 5852–5856, 2005.
- [46] K. van Dijke et al., "Effect of viscosities of dispersed and continuous phases in microchannel oil-in-water emulsification," *Microfluid Nanofluid*, vol. 9, pp. 77–85, 2010.
- [47] K. van Dijke, K. Schroen, and R. Boom, "Microchannel emulsification : from computational fluid dynamics to predictive analytical model," *Langmuir*, vol. 24, pp. 10107–10115, 2008.
- [48] E. van der Zwan, K. Schroen, and R. Boom, "A geometric model for the dynamics of microchannel emulsification," *Langmuir*, vol. 25, pp. 7320–7327, 2009.
- [49] V. Raimbault, *Etude et développement d'un système microfluidique à ondes de Love dédié à la caractérisation de fluides complexes*. PhD thesis, Université de Bordeaux 1, 2002.
- [50] S. Kim, *A study of non-newtonian viscosity and yield stress of blood in a scanning capillary-tube rheometer*. PhD thesis, Drexel University, 2002.
- [51] N. Belmiloud, *Micro rhéomètre sur Silicium pour chimie haut débit*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2008.
- [52] C. Pipe, T. Majmudar, and G. McKinley, "High shear rate viscometry," *Rheologica Acta*, vol. 47, pp. 621–642, 2008.
- [53] C. Masselon, *Effets non locaux dans un écoulement microfluidique de micelles géantes*. PhD thesis, Université de Bordeaux I, 2008.
- [54] G. Davies and J. Stokes, "On the gap error in parallel plate rheometry that arises from the presence of air when zeroing the gap," *Journal of Rheology*, vol. 49, pp. 919–922, 2005.
- [55] R. Connelly and J. Greener, "High-shear viscometry with a rotational parallel-disk device," *Journal of Rheology*, vol. 29, pp. 209–226, 1985.
- [56] J. Alsten and S. Granick, "Molecular tribometry of ultrathin liquid films," *Physical Review Letters*, vol. 61, pp. 2570–2573, 1988.
- [57] C. Clasen and G. McKinley, "Gap-dependent microrheometry of complex liquids," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 124, pp. 1–10, 2004.
- [58] J. Peachey, J. Alsten, and S. Granick, "Design of an apparatus to measure the shear response of ultrathin liquid films," *Review of Scientific Instruments*, vol. 62, pp. 463–473, 1991.

- [59] S. Baek and J. Magda, "Monolithic rheometer plate fabricated using silicon micromachining technology and containing miniature pressure sensors for n_1 and n_2 measurements," *Journal of Rheology*, vol. 47, pp. 1249–1260, 2003.
- [60] N. Srivastava, R. Davenport, and M. Burns, "Nanoliter viscometer for analyzing blood plasma and other liquid samples," *Analytical Chemistry*, vol. 77, pp. 383–392, 2005.
- [61] N. Srivastava and M. Burns, "Analysis of non-newtonian liquids using a microfluidic capillary viscometer," *Analytical Chemistry*, vol. 78, pp. 1690–1696, 2006.
- [62] H. Berthet et al., "Design and characterization of a mems-microfluidic sensor for rheological applications," *Advanced Materials Research*, vol. 74, pp. 81–84, 2009.
- [63] H. Berthet et al., "Time-of-flight thermal flowrate sensor for lab-on-chip applications," *Lab Chip*, vol. 11, pp. 215–223, 2011.
- [64] C. Macosko, *Rheology principles, measurements and applications*. New York, NY : Wiley-VCH, 1994.
- [65] N. Nguyen and Z. Wu, "Micromixers : a review," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 15, pp. 1–16, 2005.
- [66] V. Hessel, H. Lowe, and F. Schonfeld, "Micromixers : a review on passive and active mixing principles," *Chemical Engineering Science*, vol. 60, pp. 2479–2501, 2006.
- [67] E. Mansur et al., "A state of the art review of mixing in microfluidic mixers," *Chinese Journal of Chemical Engineering*, vol. 16, pp. 503–516, 2008.
- [68] A. Kamholz et al., "Quantitative analysis of molecular interaction in a microfluidic channel : The t-sensor," *Analytical Chemistry*, vol. 71, pp. 5340–5347, 1999.
- [69] J. Knight et al., "Hydrodynamic focusing on a silicon chip : Mixing nanoliters in microseconds," *Physical Review Letters*, vol. 80, pp. 3863–3866, 1998.
- [70] S. Lee, D. Kim, and T. Kwon, "A split and recombination micromixer fabricated in a pdms three-dimensional structure.," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 16, pp. 1067–1072, 2006.
- [71] W. Fang and J. Yang, "A novel microreactor with 3d rotating flow to boost fluid reaction and mixing of viscous fluids.," *Sensors and Actuators B Chem*, vol. 140, no. 2, pp. 629–642, 2009.
- [72] H. Song, J. Tice, and R. Ismagilov, "A microfluidic system for controlling reaction networks in time," *Angewandte Chemie International Edition*, vol. 42, pp. 767–772, 2003.
- [73] M. Oddy, J. Santiago, and J. Mikkelsen, "Electrokinetik instability micromixing," *Analytical Chemistry*, vol. 73, pp. 5822–5832, 2001.
- [74] Y. Fouillet et al., "Digital microfluidic design and optimization of classic and new fluidic functions for lab on a chip systems," *Microfluid Nanofluid*, vol. 4, pp. 159–165, 2008.
- [75] S. Hilgenfeldt, S. Koehler, and H. A. Stone, "Dynamics of coarsening foams : accelerated and self-limiting drainage," *Physical Review Letters*, vol. 86, pp. 4704–4707, 2001.
- [76] R.K.Prudhomme, T.W.Chapman, and J. R.Bowen, "Laminar compressible flow in a tube," *Applied Scientific Research*, vol. 43, pp. 67–74, 1986.
- [77] J. Eggers, "Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows," *Reviews of Modern Physics*, vol. 69, pp. 865–929, 1997.

- [78] X. Li et al., "Mechanical properties of mono-crystalline silicon thin films measured by different methods," *International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science*, pp. 1–6, 2006.
- [79] C. Liu, *Fundamentals of MEMS*. Upper Saddle River, NJ : Prentice Hall, 2nd edition, 2006.
- [80] J. B. Secur and H. E. Oberstack, "Viscosity of glycerol and its aqueous solutions," *Industrial and Engineering Chemistry*, vol. 43, pp. 2117–2220, 1951.
- [81] D. Ambrose and C. Tsonopoulos, "Vapor-liquid critical properties of elements and compounds. 2. normal alkanes," *Journal of Chemical and Engineering Data*, vol. 40, pp. 531–546, 1995.
- [82] Y. Son, "Determination of shear viscosity and shear rate from pressure drop and flow rate relationship in a rectangular channel," *Polymer*, vol. 48, pp. 632–637, 2007.
- [83] B. Yasiliata, C. Clasen, and G. McKinley, "Nonlinear shear and extensional flow dynamics of wormlike surfactant solutions," *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, vol. 133, pp. 73–90, 2006.
- [84] C. Pipe and G. McKinley, "Microfluidic rheometry," *Mechanics Research Communications*, vol. 36, pp. 110–120, 2009.
- [85] N.-S. Cheng, "Formula for viscosity of glycerol-water mixture," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, vol. 47, pp. 3285–3288, 2008.
- [86] P. Galambos and F. Forster, "Micro-fluidic diffusion coefficient measurement," *Micro Total Analysis Systems*, pp. 189–192, 1998.
- [87] D. M. Cristancho et al., "Volumetric properties of glycerol + water mixtures at several temperatures and correlation with the jouyban-acree model," *Rev. Colomb. Cienc. Quim. Farm.*, vol. 40, pp. 92–115, 2011.
- [88] J. Suhling and R. Jaeger, "Silicon piezoresistive stress sensors and their application in electronic packaging," *IEEE Sensors Journal*, vol. 01, pp. 14–30, 2001.
- [89] S. Tadigadapa and K. Mateti, "Piezoelectric mems sensors : state-of-the-art and perspectives," *Measurement science and technology*, vol. 20, pp. 1–30, 2009.
- [90] A. Barlian et al., "Review : Semiconductor piezoresistance for microsystems," *Proceedings of the IEEE*, vol. 97, pp. 513–552, 2009.
- [91] K. Wee et al., "Novel electrical detection of label-free disease marker proteins using piezoresistive self-sensing micro-cantilevers," *Biosensors and Bioelectronics*, vol. 20, pp. 1932–1938, 2005.
- [92] P. Waggoner and H. Craighead, "Micro- and nanomechanical sensors for environmental, chemical, and biological detection," *Lab On Chip*, vol. 7, pp. 1238–1255, 2007.
- [93] R. Kuells et al., "Novel piezoresistive high-g accelerometer geometry with very high sensitivity-bandwidth product," *Sensors and Actuator A*, vol. 182, pp. 41–48, 2012.
- [94] X. Zhang et al., "Application of piezoresistive stress sensors in ultra thin device handling and characterization," *Sensors and Actuator A*, vol. 156, pp. 2–7, 2009.
- [95] L. Kaabi et al., "Modelling and analysis of mems sensor based on piezoresistive effects," *Materials Science and Engineering C*, vol. 27, pp. 691–694, 2007.
- [96] C. Hierold et al., "Low power integrated pressure sensor system for medical applications," *Sensors and Actuators*, vol. 73, pp. 58–67, 1999.
- [97] H. Johari et al., "Low power integrated pressure sensor system for medical applications," *Proceedings International symposium on microelectronics*, vol. 5288, p. 739, 2003.

- [98] M. Rahim et al., "Measurement of thermally induced die stresses in flip chip laminate assemblies," *Inter Society Conference on Thermal Phenomena*, pp. 219–230, 2004.
- [99] J. Suhling et al., "Design and calibration of optimized 111 silicon stress sensing test chips," *Pacific RIM/ASME International InterSociety Electronic - Proceeding*, 1997.
- [100] S. Sugiyama, M. Takigawa, and I. Igarashi, "Integrated piezoresistive pressure sensor with both voltage and frequency output," *Sensors and Actuators*, vol. 4, pp. 113–120, 1983.
- [101] P. Ciureanu and S. Middelhoek, *Thin Films Resistive Sensors*. Taylor and Francis ; 1 edition, 1992.
- [102] A. Giet and L. Géminard, *Résistance des matériaux*. Paris : Dunod, 1968.
- [103] A. Technologies, *Practical Strain Gauge Measurements*. 1992.
- [104] H. Matt and F. di Scalea, "Macro-fiber composite piezoelectric rosettes for acoustic source location in complex structures," *Smart materials structures*, vol. 16, pp. 1489–1499, 2007.
- [105] A. DeHennis, *Comprehensive MicroSystems*. Elsevier, 2008.
- [106] E. Kälvesten et al., "The first surface micromachined pressure sensor for cardiovascular pressure measurements," *Micro Electro Mechanical Systems, 1998. MEMS 98. Proceedings*, pp. 574–579, 1998.
- [107] P. Hoa, G. Suchannek, and G. Gerlach, "Influence of polycrystalline silicon as electrical shield on reliability and stability of piezoresistive sensors," *Sensors and Actuator A*, vol. 120, pp. 567–572, 2005.
- [108] V. Gridchin, V. Lubimsky, and M. Sarina, "Piezoresistive properties of polysilicon films," *Sensors and Actuators A*, vol. 49, pp. 67–72, 1995.
- [109] V. Gridchin, V. Lubimsky, and M. Sarina, "Polysilicon strain gauge transducers," *Sensors and Actuators A*, vol. 30, pp. 219–223, 1992.
- [110] P. French, "Polysilicon : a versatile material for microsystems," *Sensors and Actuators A*, vol. 99, pp. 3–12, 2002.
- [111] T. Camps et al., "Development of polysilicon devices for microfluidic thermal instrumentation," *Sensors and Actuators A*, 2012.
- [112] V. Mosser et al., "Piezoresistive pressure sensors based on polysilicrystalline silicon," *Sensors and Actuators A*, vol. 28, pp. 113–132, 1991.
- [113] H. Schafer, V. Graege, and R.Kobs, "Temperature independant pressure sensor using polycrystalline silicon strain gauges," *Sensors and Actuators*, vol. 17, pp. 521–527, 1989.
- [114] P. French and A. Evans, "Polysilicon strain sensor using shear piezoresistance," *Sensors and Actuators*, vol. 15, pp. 257–272, 1988.
- [115] P. French and A. Evans, "Piezoresistance in polysilicon and its applications to strain gauges," *Solid States Electronics*, vol. 32, pp. 1–10, 1989.
- [116] A. Herrera-May et al., "Mechanical design and characterization of a resonant magnetic field microsensors with linear response and high resolution," *Sensors and Actuator A*, vol. 165, pp. 399–409, 2011.
- [117] A. Talic et al., "Novel thermal flow sensors based on a wheatstone bridge read-out," *Procedia Chemistry*, vol. 1, pp. 136–139, 2009.

- [118] F. van der Heyden et al., "A low hydraulic capacitance pressure sensor for integration with a micro viscosity detector," *Sensors and Actuators B*, vol. 92, pp. 102–109, 2003.
- [119] G. Du and X. Chen, "Mems magnetometer based on magnetorheological elastomer," *Measurements*, vol. 45, pp. 54–58, 2012.
- [120] K. Demerci et al., "Integrated silicon-based chemical microsystem for portable sensing applications," *Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems Conference (TRANSDUCERS), 16th International*, pp. 779–782, 2011.
- [121] H. Usman et al., "Design and simulation of mems based piezoresistive pressure sensor using hybrid simulation technique," *Proceedings of International Bhurban Conference on Applied Sciences and Technology*, pp. 209–212, 2011.
- [122] J. Dennis et al., "Piezoresistive pressure sensor design, simulation and modification using coventor ware software," *Journal of Applied Sciences*, vol. 8, pp. 1426–1430, 2011.
- [123] S. K. Clark and K. D. Wise, "Pressure sensitivity in anisotropically etched thin-diaphragm pressure sensors," *IEEE Transaction on Electron devices*, vol. 26, pp. 1887–1895, 1979.
- [124] L. Y. Fuller and S. Sudirgo, "Bulk micromachined pressure sensor," *Proceedings of the 15th Biennial, Industry Microelectronics Symposium*, p. 317, 2003.
- [125] C. Gradolph et al., "Impact of high-g and high vibration environments on piezoresistive pressure sensor performance," *Sensors and Actuators A*, vol. 150, pp. 69–77, 2009.
- [126] C. H. Wu, C. Zorman, and M. Mehregany, "Fabrication and testing of bulk micromachined silicon carbide piezoresistive pressure sensors for high temperature applications," *IEEE Sensors Journal*, vol. 6, pp. 316–324, 2006.
- [127] R. Ziermann et al., "A high temperature pressure sensor with beta sic piezoresistors on soi substrates," *Solid State Sensors and Actuators*, vol. 2, pp. 1411–1414, 1997.
- [128] E. Lunder, "Polycrystalline silicon-based sensors," *Sensors and Actuators*, vol. 10, pp. 9–23, 1986.

RÉSUMÉ

Cette thèse porte sur la création et la caractérisation *in situ* de fluides complexes en géométrie confinée. L'objectif est de réaliser des systèmes capables de générer et de caractériser d'un point de vue rhéologique des fluides complexes, comme des dispersions biphasiques (émulsions, mousses), ou encore des mélanges de fluides.

Une première partie de cette thèse se concentre sur la réalisation et la modélisation d'un nouveau microgénérateur permettant de créer des dispersions avec un diamètre en deçà de $10\mu m$ et un coefficient de variation proche de 1% (performances situées à l'état de l'art).

Nous avons ensuite réalisé un microrhéomètre afin de tenter l'étude de la rhéologie de tels fluides. La caractérisation de ce dispositif nous a amené à employer plusieurs méthodes d'envoi contrôlé du fluide (contrôle indépendant du débit ou de la pression), ainsi que l'utilisation de plusieurs types de fluides (Newtoniens et non Newtoniens) révélant des résultats en adéquation avec nos attentes théoriques. Cette étude nous a également amené à utiliser un micromélangeur dans le but de générer des fluides à viscosités variables que nous avons mesuré à l'aide du microrhéomètre. Cela nous a permis de vérifier rapidement, dans une expérience de type *high-throughput*, des résultats obtenus par des tiers avec des moyens classiques de laboratoire, publiés dans la littérature. Le système que nous avons développé se rend extrêmement utile à l'étude des viscosités des mélanges de fluides dissimilaires, offrant un outil versatile à ce champs de recherche qui reste essentiellement empirique.

Enfin, nous avons réalisé un nouveau type de microrhéomètre pourvu d'un générateur de fluides complexes intégré. Les travaux réalisés sur cette première version ont permis d'optimiser la géométrie et de définir des procédés fiables de fabrication, ce qui ouvrira des perspectives très intéressantes dans un avenir proche, afin de réaliser des systèmes complètement intégrés pour l'étude des dispersions de différents types.

MOTS-CLES : Microfluidique, géométrie confinée, systèmes intégrés, MEMS, micromélangeur, microgénérateur, mousse, émulsion, fluides complexes, viscosité de mélange, rhéologie

ABSTRACT

This thesis focuses on the creation and characterization *in situ* of complex fluids in confined geometry. The aim is to build systems capable of generating and characterizing complex fluids, such as biphasic dispersions (emulsions, foams), or fluids mixtures.

The first part of this thesis focuses on the modeling and implementation of a new microgenerator to create dispersions with a diameter below $10\ \mu m$ and with a coefficient of variation close to 1% (state of the art).

Then we fabricated a microrheometer to study the rheology of such fluids. The characterization of this device led us to use several methods of sending controlled fluid (independent control of flow or pressure), and the use of several types of fluids (Newtonian and non-Newtonian) revealed results in line with our theoretical expectations. This study also led us to use a micromixer in order to generate variables viscosities fluid that we measured using microrheometer. This allowed us to quickly check in a high-throughput experience, results obtained by others with conventional fashion published in the literature. The system we have developed will make it extremely useful for the study of the viscosities of dissimilar fluids mixtures, offering a versatile tool in this field of research remains largely empirical.

Finally, we realized a new type of microrheometer equipped with an integrated complex fluids generator. Work carried out on this first version have optimized the geometry and define reliable methods of manufacture, which opens exciting prospects in the near future in order to achieve fully integrated systems for the study of different dispersions types.

KEY-WORDS : Microfluidics, confined geometry, integrated systems, MEMS, micromixer, microgenerator, foam, emulsion, complex fluids, mixing viscosity, rheology

