



HAL
open science

Système microfluidique à onde élastique de surface : vers la duplication d'ADN par PCR

Thibaut Roux-Marchand

► To cite this version:

Thibaut Roux-Marchand. Système microfluidique à onde élastique de surface : vers la duplication d'ADN par PCR. Autre [cond-mat.other]. Université de Lorraine, 2013. Français. NNT : 2013LORR0259 . tel-01750540

HAL Id: tel-01750540

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750540>

Submitted on 29 Mar 2018

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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

THÈSE

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Spécialité: Physique

Présentée par :

Thibaut Roux-Marchand

Systeme microfluidique à onde élastique de surface : Vers la duplication d'ADN par PCR

Thèse soutenue publiquement le 2 Décembre 2013 à Nancy devant le jury composé de :

Mme Corinne Dejous	Professeur, IPB/ENSEIRB-MATMECA	Rapporteur
M. Laurent Francis	Professeur, Université Catholique de Louvain	Rapporteur
M. Laurent Le Brizoual	Professeur, Université de Rennes 1	Examineur
M. Michael Baudoin	Maitre de conférences, Université de Lille 1	Examineur
M. Omar Elmazria	Professeur, Université de Lorraine	Examineur
M. Mustapha Nadi	Professeur, Université de Lorraine	Président du jury
M. Frédéric Sarry	Professeur, Université de Lorraine	Directeur de thèse
M. Denis Beyssen	Maitre de conférences, Université de Lorraine	Co-directeur de thèse

*Institut Jean Lamour –UMR 7198- Département N2EV – Equipe 405
Faculté des Sciences et Technologies - BP 70239- 54506 VANDOEUVRE les NANCY cedex*

Université de Lorraine – Pôle M4 : matière, matériaux, métallurgie, mécanique

A ma famille.

Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué à l'Institut Jean Lamour (IJL), au département Nanomatériaux, Electronique Et Vivant (N2EV), dans l'équipe 405 Micro et Nanosystèmes. Je voudrais tout d'abord remercier M. Jean-Marie Dubois et M. Eric Gaffet, directeurs du laboratoire durant ma thèse, pour m'avoir accueilli dans leurs locaux.

Je témoigne toute ma gratitude à Madame Corinne Dejous, Professeur à l'Université de Bordeaux 1, et Monsieur Laurent Francis, Professeur à l'Université Catholique de Louvain, d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce mémoire et de l'intérêt qu'ils ont accordé à mon travail. J'adresse mes sincères remerciements à Messieurs Laurent Le Brizoual, Professeur à l'Université de Rennes 1, Michael Baudoin, maître de conférences à l'Université de Lille 1, Omar Elmazria et Mustapha Nadi, Professeurs à Université de Lorraine, de me faire l'honneur d'être membre de ce jury.

Que Messieurs Frédéric Sarry, Professeur à l'Université de Lorraine, et Denis Beyssen, maître de conférences à l'Université de Lorraine, encadrants de ces travaux, trouvent en ces quelques mots l'expression de ma plus grande reconnaissance. Je ne vous remercierai jamais assez de m'avoir fait confiance, de m'avoir apporté des conseils et de m'avoir guidé pendant ces trois années.

Je tiens à remercier Messieurs Didier Rouxel et Omar Elmazria, Professeurs à l'Université de Lorraine et directeurs de l'équipe 405 Micro et Nanosystèmes dans laquelle j'ai effectué ces travaux, pour leur accueil, leur disponibilité et la confiance qu'ils m'ont accordé. Plus généralement, j'associe à mes remerciements l'ensemble de cette équipe, à savoir Eloi Blampin, maître de conférences à l'Université de Masuku, premier collègue de bureau et les nombreuses discussions scientifiques, spirituelles et culturelles que l'on a partagé et toute la sagesse qu'il m'a apporté (merci Eloi, tu m'as appris à observer la vie autrement) , Ouarda Legrani, aujourd'hui enseignant chercheur Supélec, pour sa disponibilité, ses compétences en dépôts par pulvérisation cathodique (sacré DP650 !) et en spectrométrie photoélectronique induits par rayons X, sa franchise et plus globalement tous les bons moments partagés ensemble, Brice Vincent, maître de conférences à l'Université de Lorraine, pour toutes les conversations scientifiques, morales et personnelles que nous avons eues conjointement, Thierry Aubert, maître de conférence à l'Université de Savoie, pour nos discussions à propos du Langasite, des dépôts d'AlN par pulvérisation cathodique et sa bonne humeur constante, Mourad Oudich, maître de conférences à l'Université de Lorraine, et nos échanges sportifs à n'en plus finir, et tous les autres membres, encore en poste ou non, Badreddine Assouar, Gerard Prieur, Abdelhamid M'Jahed, Meriem Elhosni, Van-Son Nguyen, Rachid Hadji, Ismail Ben-Youssef. Petite aparté afin de rendre un hommage à Patrick Alnot, décédé le 12

Septembre 2009, qui était, entre autres, Professeur à l'Université Henri Poincaré et fondateur de cette équipe.

Un grand merci au responsable du centre de compétence Minalor de l'Institut Jean Lamour, Monsieur François Montaigne, Professeur à l'Université de Lorraine, et aux trois ingénieurs de la plateforme Madame Gwladys Lengaigne, Messieurs Stéphane McMurtry et Laurent Bouvot pour leur sympathie, leurs aides, parfois (souvent ?) leurs patiences, et tous les conseils à l'utilisation des différents instruments de la salle blanche. Je vous témoigne de ma plus grande sympathie pour m'avoir formé aux nombreux appareils que j'ai utilisés tout au long de ces travaux.

Je n'oublierai pas de remercier le centre de compétences Emmanuel Héré de l'Institut Jean Lamour à commencer par son responsable, Monsieur Pierre Schmitt, ainsi que Messieurs Jean-George Mussot, Dominique Mulot, Emmanuel Vatoux, Jean-François Pautex, Cyril Noirel, Damien Engeldinger, Frédéric Breton, Patrice Poirot, et Cyril Borde pour leurs grandes disponibilités, leurs solides compétences, leurs conseils avisés et les inoubliables parties de rigolades. Je vous en suis très reconnaissant.

Je tiens à adresser mes sincères remerciements au responsable du centre de compétence X-GAMMA de l'Institut Jean Lamour, Monsieur Pascal Boulet, ainsi qu'à Madame Sylvie Robert pour les formations aux différents instruments de spectrométrie photoélectronique induits par rayons X, leurs aides et leurs expériences dans ce domaine.

J'exprime une grande reconnaissance à Madame Stéphanie Grandemange, maître de conférences à l'Université de Lorraine, de l'équipe STICMo (Stratégies Thérapeutiques Innovantes et Cibles Moléculaires) dirigé par le Professeur Philippe Bécuwe au laboratoire CRAN (Centre de Recherche en Automatique de Nancy) pour sa disponibilité, la réalisation des échantillons biologiques, l'analyse de ces derniers suite à nos expériences, et plus généralement, son accueil et sa bonne humeur.

Je remercie également toutes les personnes ingénieurs, informaticiens, techniciens, secrétaires, doctorants et chercheurs qui m'ont apporté leur aide et leur disponibilité : Anne Sophie Latreille, Martine Gaulier, Joëlle Poisson, Christine Sartori, Luc Moreau, Guillaume Bousselin, Jérémy Legrand, Jordan Cavalier, David Coulette, Christian Senet, Ahmad Hamdan, Julien Claudel, Philippe Pigeat. Un grand merci à vous tous.

Aurais-je pu en arriver là sans eux ? Je tiens à exprimer mes plus sincères remerciements à mes parents, pour m'avoir donné la possibilité d'en arriver jusqu'ici et qui m'ont toujours encouragé, à mes frères et leur conjointe de m'avoir soutenu et tracé la route avant que la prene, à toute ma famille pour leur présence, à « ma » Julie de me supporter au quotidien et pour tout ce que qu'elle m'apporte, à ses parents Alain et Laurence Cotin, sa sœur Aurélie Cotin et son conjoint Franck Vilanova de m'avoir accueilli dans leur famille comme l'un de leurs membres, et une pensée à mes nièces et neveux qui m'offrent la possibilité, l'espace de quelques temps, de m'évader du quotidien.

Pour finir, un dernier merci à toutes les personnes, non citées, qui ont participé à ma réussite de prêt ou de loin. Plusieurs pages seraient nécessaires et il est, inévitablement, impossible de toutes les nommer. Je pense bien évidemment à eux, famille proche et éloigné, collègues, amis, connaissances... Merci à vous tous.

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE I : ETAT DE L'ART	7
I.A. Prologue	7
I.B. Historique et premières applications	8
I.B.1. Les premiers pas	8
I.B.2. La première marche	9
I.B.3. La course	10
I.C. Les différentes approches microfluidiques.....	12
I.C.1. La microfluidique continue	12
I.C.1.1. Fabrication des microcanaux	12
I.C.1.1.1. Le microusinage de volume	12
I.C.1.1.2. Le microusinage de surface	13
I.C.1.1.3. La technologie LIGA	13
I.C.1.1.4. La résine photosensible SU-8	14
I.C.1.1.5. Le moulage de polymères	15
I.C.1.2. Les méthodes de transport de liquide en microfluidique continue	15
I.C.1.2.1. Les micropompes mécaniques	16
I.C.1.2.1.1. Principe	16
I.C.1.2.1.2. Mécanismes d'actionnement.....	16
I.C.1.2.1.3. Ecoulement engendré de Poiseuille.....	18
I.C.1.2.1.4. Limites.....	19
I.C.1.2.2. Les micropompes « énergétiques »	20
I.C.1.2.2.1. L'actionnement électrohydrodynamique	20
I.C.1.2.2.2. L'electro-osmose.....	21
I.C.1.2.2.3. L'actionnement magnétohydrodynamique	21
I.C.1.3. Conclusion partielle	22
I.C.2. La microfluidique discrète	22
I.C.2.1. La microfluidique discrète en milieu fermé (microcanaux)	22
I.C.2.1.1. Introduction et applications	22
I.C.2.1.2. Principe.....	23
I.C.2.1.3. Avantages et limites	25
I.C.2.2. La microfluidique discrète en milieu ouvert	26
I.C.2.2.1. La technique d'électromouillage sur diélectrique (EWOD)	27
I.C.2.2.1.1. Historique, principe et premières applications.....	27
I.C.2.2.1.2. La mise en mouvement de gouttelettes	28
I.C.2.2.1.3. Fabrication	30
I.C.2.2.1.4. Actions fluidiques et applications	30

I.C.2.2.2. La technique à base d'ondes élastiques de surface	32
I.C.2.2.2.1. Principe de génération des ondes élastiques de surface.....	32
I.C.2.2.2.2. Couplage des ondes de Rayleigh avec un liquide	34
I.C.2.2.2.3. Applications	35
I.C.2.2.2.4. Intégration et adaptation des dispositifs à ondes élastiques de surface....	36
I.C.2.2.3. Conclusion partielle.....	36
I.D. La physique mise en jeu	38
I.D.1. Un petit peu d'histoire.....	38
I.D.2. Equations d'Euler.....	38
I.D.2.1. Equation de continuité et conservation de la masse	39
I.D.2.2. Conservation de la quantité de mouvement	40
I.D.2.3. Le paradoxe de d'Alembert	41
I.D.3. Equation de Navier-Stokes	41
I.D.4. Les nombres adimensionnels	41
I.D.4.1. Le nombre de Reynolds.....	42
I.D.4.2. Le nombre de Mach	42
I.E. Conclusion.....	43
 BIBLIOGRAPHIE.....	 44
 CHAPITRE II : LES DISPOSITIFS A ONDES ELASTIQUES DE SURFACE ET LA	
MICROFLUIDIQUE.....	57

II.A. Les dispositifs à ondes élastiques de surface	57
II.A.1. L'effet piézoélectrique	57
II.A.1.1. Historique	57
II.A.1.2. Exemples d'application.....	57
II.A.2. Les ondes élastiques de surface	58
II.A.2.1. Définition.....	58
II.A.2.2. Types d'ondes élastiques de surface.....	59
II.A.2.2.1. Les modes de surface purs et l'onde de Rayleigh	59
II.A.2.2.2. Autres ondes élastiques	60
II.A.3. Génération et détection des ondes élastiques de surface	60
II.A.3.1. Principe de fonctionnement des IdTs.....	61
II.A.3.1.1. Généralités	61
II.A.3.1.2. Réponse fréquentielle d'un transducteur interdigité	62
II.A.3.2. Déviations des ondes élastiques dues aux effets du second ordre	64
II.A.3.3. Type de transducteurs.....	64
II.A.3.3.1. Les transducteurs bidirectionnels	64
II.A.3.3.2. Les transducteurs unidirectionnels	65
II.A.3.4. Principaux paramètres des matériaux piézoélectriques	66
II.A.4. Applications des dispositifs à ondes élastiques de surface	67

II.B. Couplage des ondes élastiques avec un liquide	69
II.B.1. Introduction	69
II.B.2. L'acoustic streaming	69
II.B.2.1. Equations de base	69
II.B.2.2. Propagation d'une onde plane dans un fluide.....	71
II.B.2.3. Rayonnement d'une onde élastique de surface dans un liquide	74
II.B.3. Interactions entre les ondes élastiques de surface et une microgoutte.....	79
II.B.3.1. Déplacement de goutte	79
II.B.3.2. Ecoulement interne	80
II.B.3.3. Echauffement	82
II.B.3.4. Atomisation	84
II.B.3.5. Vibration de la surface libre de la goutte	85
II.B.4. Intégration avec d'autres technologies.....	85
II.C. Conclusion	87
 BIBLIOGRAPHIE	 88
 CHAPITRE III : TRAITEMENT DE SURFACE	 97
 III.A. Introduction	 97
III.A.1. La tension superficielle	98
III.A.2. La longueur capillaire	98
III.A.3. Le mouillage	99
III.A.4. Loi de Young-Dupré.....	101
III.A.5. Hystérésis de l'angle de contact	101
III.A.6. Réalisation de surfaces hydrophobes et super-hydrophobes	102
 III.B. Techniques de caractérisation des couches (super) hydrophobes.....	 104
III.B.1. Mesures des angles de contacts statique et dynamique	104
III.B.2. Epaisseur des couches.....	106
III.B.3. Le dispositif à ondes élastiques de surface	106
III.B.4. Caractérisation du dispositif à ondes élastiques de surface	106
III.B.5. Maintien de la goutte pour l'échauffement.....	107
 III.C. Traitement de surface.....	 109
III.C.1. Introduction et propriétés intrinsèques du Niobate de Lithium	109
III.C.2. Monocouche de silane	109
III.C.2.1. Protocole	110
III.C.2.2. Caractérisation de la couche d'OTS	110
III.C.2.3. Silanisation indirecte du substrat	111
III.C.2.3.1. Protocole	112
III.C.2.3.2. Caractérisation de la couche transférée	112
III.C.2.3.1. Réponse fréquentielle du dispositif SAW silanisé	113
III.C.2.3.2. Seuil d'actionnement de la goutte	114
III.C.3. Couche de copolymère P(VDF-TrFe)	114

III.C.3.1. Protocole	115
III.C.3.2. Epaisseur des films	115
III.C.3.3. Caractérisation de la couche de P(VDF-TrFe)	116
III.C.3.4. Réponse fréquentielle du dispositif SAW	117
III.C.3.5. Seuil d'actionnement de la goutte	118
III.C.4. Couche super-hydrophobe à base de polycarbonate	119
III.C.4.1. Protocole expérimental	120
III.C.4.2. Formation de la couche	121
III.C.4.3. Caractérisation de la couche super-hydrophobe	122
III.C.4.4. Réponse fréquentielle, épaisseur et interaction avec une goutte	122
III.D. Conclusion	124
BIBLIOGRAPHIE	125
CHAPITRE IV : ECHAUFFEMENT ET UNIFORMITE DE TEMPERATURE DE MICROGOUTTES.....	131
IV.A. Introduction	131
IV.B. La thermographie IR	133
IV.B.1. Rayonnement infrarouge.....	133
IV.B.2. Corps noir	134
IV.B.2.1. Loi de Planck et loi de Wien	134
IV.B.2.2. Loi de Lambert.....	135
IV.B.2.3. Loi de Stefan-Boltzmann	136
IV.B.2.4. Etalonnage des caméras thermiques	136
IV.B.3. Corps réels	136
IV.B.3.1. Bilan énergétique	137
IV.B.3.2. Emissivité et loi de Kirchhoff	137
IV.B.3.3. Corps gris.....	138
IV.C. Calibration des milieux et matériaux	140
IV.C.1. Mélange visqueux	140
IV.C.2. Calibration de l'émissivité.....	141
IV.C.2.1. Méthode « directe ».....	141
IV.C.2.2. Méthode « indirecte » : bilan des luminances	141
IV.C.2.3. Protocole expérimental.....	142
IV.C.3. Emissivité des matériaux	143
IV.C.3.1. Le corps gris.....	143
IV.C.3.2. Substrat et mélanges visqueux.....	144
IV.D. Protocole expérimental	147
IV.D.1. Mesure de température	147
IV.D.2. Images observées	147
IV.D.3. Uniformité de la température	148

IV.D.4. Erreurs de mesure	149
IV.E. Résultats.....	150
IV.E.1. Dispositifs « classiques »	150
IV.E.1.1. Réalisation des dispositifs.....	150
IV.E.1.2. Types de transducteur	151
IV.E.1.3. Echauffement des gouttes.....	152
IV.E.1.3.1. Observations temporelles	152
IV.E.1.3.2. Effet de la viscosité.....	153
IV.E.1.3.3. Effet de la fréquence	154
IV.E.1.4. Uniformité de la température	156
IV.E.1.4.1. Effet de la puissance et de la fréquence	156
IV.E.1.4.2. Effet du volume	157
IV.E.1.5. Réduction des puissances en jeu	158
IV.E.2. Dispositif à transducteur enterré	160
IV.E.2.1. Réalisation des dispositifs.....	160
IV.E.2.2. Réponse fréquentielle	161
IV.E.2.3. Image infrarouge	162
IV.E.2.4. Echauffement des gouttes.....	162
IV.E.2.5. Uniformité de l'échauffement	165
IV.F. Conclusion	167
 BIBLIOGRAPHIE.....	 169
 CHAPITRE V : COMPATIBILITE DES DISPOSITIFS A ONDES ELASTIQUES DE SURFACE AVEC LA REACTION DE PCR.....	 173

V.A. Introduction	173
V.B. La réaction de PCR.....	175
V.B.1. Définition et historique.....	175
V.B.2. Principe de la réaction	176
V.B.2.1. Le milieu réactionnel	176
V.B.2.1.1. ADN cible.....	176
V.B.2.1.2. Les réactifs	178
V.B.2.1. Etapes de la réaction	178
V.B.2.1.1. La dénaturation.....	178
V.B.2.1.2. L'hybridation	178
V.B.2.1.3. L'élongation.....	179
V.B.2.2. Conséquence et cycles suivants	180
V.B.3. Applications de la PCR	181
V.B.3.1. Application indirecte	181
V.B.3.2. Application directe	182
V.B.3.3. Thermocycleurs classiques	184

V.C. La PCR et la microfluidique	185
V.C.1. Miniaturisation et enjeux	185
V.C.2. La PCR microfluidique	185
V.C.3. La PCR assistée par onde élastique de surface	186
V.D. Résultats	188
V.D.1. Effet de la viscosité du milieu réactionnel.....	188
V.D.1.1. Echantillons de PCR classiques.....	188
V.D.1.2. Echantillons de PCR visqueux.....	189
V.D.1.3. Protocole expérimental : PCR et quantification.....	189
V.D.1.4. Conséquences de la viscosité.....	190
V.D.2. Effet des ondes élastiques de surface	191
V.D.2.1. Protocole expérimental	191
V.D.2.1.1. Protocole global.....	191
V.D.2.1.2. Protocole détaillé	192
V.D.2.1.2.1. Préparation et irradiation d'échantillons de PCR.....	192
V.D.2.1.2.2. PCR classique et quantification traditionnelle	193
V.D.2.2. Effet de la puissance	193
V.D.2.3. Effet de la durée d'irradiation.....	194
V.E. Conclusion	196
 BIBLIOGRAPHIE.....	 197
 CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....	 201

Introduction générale

La microfluidique, branche de la mécanique des fluides, a connu un essor sans précédent depuis le début des années 1990. Cette science, plutôt récente, porte sur l'étude du comportement des fluides à faibles échelles et est aujourd'hui au croisement de nombreuses disciplines telles que la biologie et la chimie. L'émergence de la microfluidique est principalement issue de l'avancée des techniques de microfabrication développées en électronique ce qui a basé les premières recherches expérimentales sur des dispositifs en silicium et en verre jusque dans les années 90. C'est justement au début de cette décennie qu'apparaît pour la première fois le terme μ TAS (Micro Total Analysis System) suite à la présentation d'un système d'analyse microfluidique compact de A.Manz qui marqua le début de l'envol de la microfluidique. S'en suit alors une multitude d'études sur ce domaine qui ne cesse encore aujourd'hui d'attiser la curiosité des chercheurs.

Un des outils microfluidiques parmi les nombreux qui existent est celui à onde élastique de surface qui a démontré un fort potentiel tant dans le domaine des capteurs que dans celui des actionneurs microfluidiques. Le principe consiste à exciter électriquement un transducteur métallique réalisé à la surface d'un matériau piézoélectrique. En fonction du choix de ce dernier, un certain type d'onde élastique de surface est générée et se propage à la surface du matériau. Celle de Rayleigh, par exemple, permet des interactions avec des gouttes de quelques dizaines de nanolitres à plusieurs microlitres « posées » sur le matériau : mélange, échauffement, déplacement et atomisation de gouttes sont les principaux effets remarquables et sont à la base de plusieurs systèmes microfluidiques. Il s'agit donc de dispositifs ouverts où les microgouttes sont dispensées à la surface du composant sans connexions fluidiques complexes.

L'équipe Micro et Nano Systèmes de l'Institut Jean Lamour à Nancy, avec laquelle ces travaux ont été effectués, souhaite développer une plateforme miniaturisée à base d'onde élastique de surface intégrant différentes fonctions de traitement et d'analyses biologiques. L'une d'entre elles est la réaction de PCR (Polymerase Chain Reaction). Il s'agit d'une réaction enzymatique à cycle thermique capable d'amplifier des séquences d'ADN précises et de rendre

décelable, et de ce fait analysable, de l'ADN souvent présent à l'état de traces dans les échantillons. Cette réaction est fondamentale dans plusieurs domaines tels que ceux biologiques et médicaux. Sa miniaturisation est très étudiée dans le but de diminuer les durées réactionnelles et de réaliser des dispositifs d'analyses toujours plus petits afin de proposer des systèmes portables et capables, notamment, de diagnostiquer des maladies de plus en plus rapidement.

Dans le but d'intégrer cette réaction à un système type μ TAS (aussi appelé laboratoire sur puce) à base d'ondes élastiques de surface, nous étudierons différents points. Nous aborderons l'échauffement de goutte induit par l'atténuation des ondes élastiques dans le liquide ainsi que l'uniformité de la température, importante pour ce type de réaction. Nous vérifierons et validerons ensuite la compatibilité entre les réactifs de la réaction de PCR et les ondes élastiques de surface indispensables à l'échauffement.

Par ailleurs, le déplacement de gouttes est un aspect fondamental pour la réalisation d'un laboratoire sur puce afin de mouvoir ces dernières dans les différentes zones de réactions et d'analyses. Une couche aux caractéristiques hydrophobes est indispensable entre les gouttes et le matériau piézoélectrique afin de minimiser la force nécessaire à l'actionnement. Une étude portera ainsi sur ce point.

Au-delà de la réaction de PCR à cycle thermique, l'étude de l'échauffement et de l'uniformité de la température de gouttes présentée dans ce mémoire pourra également être dédiée à d'autres réactions biologiques ou encore chimiques dont la cinétique dépend souvent de la température.

Le chapitre 1 de ce manuscrit est dédié à l'état de l'art concernant la microfluidique en général. Nous présenterons l'historique depuis l'avancée des techniques de fabrication de microélectronique jusqu'à nos jours avant d'exposer les différentes approches microfluidiques ainsi que la physique mise en jeu.

Le second chapitre concerne les dispositifs à ondes élastiques de surface et la microfluidique. Nous verrons tout d'abord le principe des dispositifs à onde élastiques de surface et les premières applications qui en ont découlé. Nous aborderons ensuite le couplage des ondes élastiques avec un liquide d'une manière théorique avant de présenter les nombreuses applications dont les plus récentes

Le troisième chapitre est consacré aux couches hydrophobes. Après un rappel à propos des phénomènes superficiels et des techniques de caractérisations de ces couches, nous présenterons une technique simple de réalisation de couches hydrophobes que nous comparerons à d'autres.

Dans le quatrième chapitre sont abordées la température et l'uniformité de la température de gouttes échauffées par des ondes élastiques de surface. Nous introduirons

d'abord la thermographie infrarouge, la calibration de notre système et le protocole expérimental avant de présenter les résultats.

Pour finir, le chapitre 5 est consacré à l'étude de la compatibilité entre les réactifs de la réaction de PCR avec les ondes élastiques de surface. Nous présenterons le principe de la réaction ainsi que quelques applications, suivi de l'avantage qu'apporte la microfluidique à sa miniaturisation avant d'exposer les résultats

Chapitre 1

Etat de l'art de la microfluidique

Chapitre I : Etat de l'art

I.A. Prologue

Tout d'abord, que signifie microfluidique? Il s'agit de la science et de la technologie de manipulation de fluides dont au moins une des dimensions du système est de l'ordre du micromètre. Cette limite est informelle. En effet, il n'est pas rare de voir des systèmes microfluidiques de taille bien supérieure, notamment les systèmes « ouverts » que nous aborderons plus tard. Ces microsystèmes sont développés suivant deux techniques : la microfluidique continue où le liquide s'écoule dans des microcanaux de l'ordre de la dizaine à la centaine de micromètres organisés en réseaux, et la microfluidique discrète, ou encore digitale, où des gouttes, de l'ordre du nanolitre jusqu'à quelques microlitres sont manipulées. Les premières applications de cette technologie furent dans le domaine de l'analyse pour laquelle la microfluidique offre de nombreux avantages comme le faible volume d'échantillons et de réactifs, la détection d'espèces avec une haute résolution, une forte sensibilité, le faible coût de fabrication ou encore le faible temps d'analyse [1]. La microfluidique est devenue, ces dernières décennies, une science à part entière. Cet intérêt s'illustre notamment sur la Figure I.1 qui présente l'évolution du nombre de publications dans ce champ scientifique.

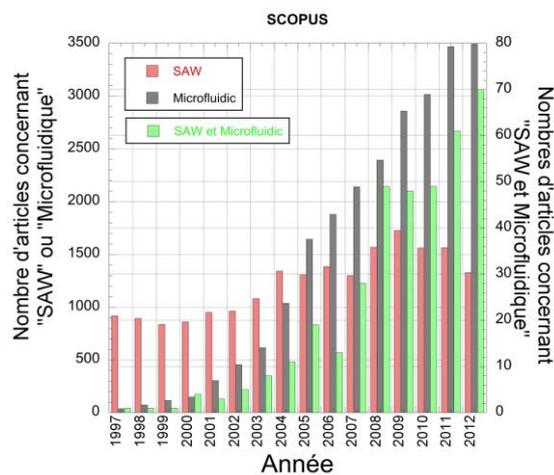


Figure I.1 : Evolution du nombre de références indexées dans la base de données de Scopus concernant la microfluidique et les ondes élastiques de surface (SAW)

I.B. Historique et premières applications

I.B.1. Les premiers pas

La microfluidique est une branche récente de la mécanique des fluides. En tant que discipline, la microfluidique est apparue à la fin des années 60 mais son développement était très lent en raison de difficultés liées à l'utilisation de dispositifs en silicium ou en verre telles que l'usinage de ces matériaux. La miniaturisation de systèmes mécaniques et électromécaniques sur silicium a donné naissance aux MEMS (Micro Electro Mechanical System) à la fin des années 50. On peut fixer le début de leur histoire en 1959 après le discours de R. Feynman « *There's Plenty of Room at the Bottom* » à la réunion de l'APS (American Physical Society) à l'institut technologique de Californie (Caltech). Depuis, de nombreux MEMS ont vu le jour. En tant que grand succès mondial, on peut citer, entre autres, les capteurs MEMS accéléromètres. La première apparition date de la fin des années 70 à l'université de Stanford. Il a fallu une quinzaine d'années avant de voir ces premiers dispositifs produits à grande échelle [2]. Ils équipent aujourd'hui toutes les automobiles modernes pour la détection des chocs et la commande des airbags, les jeux vidéo ou encore les téléphones portables.

La microfluidique s'est développée grâce aux MEMS dans un premier temps. En effet, les techniques de gravure profonde et de collage des MEMS ont permis la réalisation de canaux à l'échelle micrométrique sur silicium et verre puis de les refermer avec un « capot ». Des puces à succès mondial ont vu le jour suite à la combinaison des MEMS et de la microfluidique. Une des premières applications commerciales est l'imprimante à jet d'encre développée au début des années 70 et disponible commercialement en 1976. C'est la société IBM qui brevète cette technologie et nomme la première imprimante à jet d'encre IBM 4640 Ink Jet. Le schéma de principe de la tête d'impression à jet d'encre est illustré sur la Figure I.2. Elle est constituée d'une partie micro-fabriquée en silicium issue des MEMS avec un réservoir d'encre, un élément chauffant réalisé en couche mince et une buse de quelques dizaines de micromètres (Figure I.2.a). Une impulsion électrique est appliquée à l'élément chauffant pendant quelques microsecondes permettant d'obtenir une température de surface de l'ordre de 300 à 500°C. La fine couche d'encre proche de l'élément chauffant se vaporise créant ainsi une bulle (Figure I.2.b). La formation de cette bulle induit une forte pression et propulse l'encre vers l'extérieur (Figure I.2.c). Le diamètre des gouttes éjectées est de l'ordre de la dizaine de micromètres et celles-ci s'écrasent sur le papier formant une tache élémentaire. Des gouttes satellites de plus petite taille, appelées aussi gouttes parasites, sont émises altérant la précision de l'impression. Cette dernière est directement liée aux diamètres des gouttes. Typiquement, une goutte de 50µm correspond à une précision de 500dpi environ [4]. Les têtes d'imprimantes à jet d'encre sont toujours aujourd'hui fabriquées à partir de la technologie silicium issue de la microélectronique affirmant le grand succès commercial des MEMS.

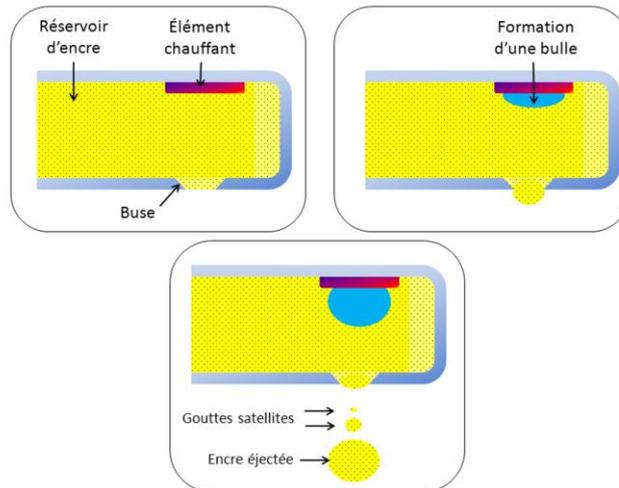


Figure I.2 : Schéma de principe de la tête d'impression à jet d'encre.

Il ne faut pas résumer le développement de la microfluidique uniquement par l'évolution des MEMS au contraire. Ces derniers étant en plein développement, la microfluidique avait alors à disposition des outils pour réaliser des microsystèmes simples. Or, on ne trouve que peu de travaux expérimentaux avant les années 90. Un premier dispositif de chromatographie à gaz miniaturisé est développé en 1975 par S. Terry [4] [5]. Celui-ci est constitué d'un microcanal de 1,5m de longueur gravé dans le silicium et d'une valve d'injection intégrée au dispositif permettant d'autoriser l'accès du gaz au microcanal. Ce chromatographe sépare un mélange gazeux simple en quelques secondes et ne mesure que quelques centimètres. Malgré les possibilités de ce type de dispositif, il est resté à l'état de développement dû au fait que la communauté scientifique dans ce domaine n'était pas prête à utiliser des dispositifs miniatures à base de silicium pour ses propres besoins [7]. On peut tout de même relever des travaux sur la miniaturisation sur silicium de composants comme des micropompes [8] [9] [10] [11] [12] [13], des microvalves [14] [15] et des capteurs chimiques [16] [17] [18] [19]. Seuls quelques exemples présentent la combinaison de dispositifs silicium miniaturisés couplés à des capteurs chimiques [20].

I.B.2. La première marche

Comme on peut le lire parfois, la microfluidique ne découle pas uniquement de la microélectronique et des MEMS. G.M. Whitesides [21], souligne que la microfluidique résulte de quatre antécédents : la microélectronique, la biologie moléculaire, l'analyse moléculaire et la biodéfense. En effet, les méthodes de microanalyse, comme l'électrophorèse capillaire, ont révolutionné l'analyse chimique. Ces méthodes ont permis d'atteindre simultanément une haute sensibilité et une haute résolution en utilisant de petites quantités d'échantillon. Avec les succès de ces méthodes de microanalyse, il était évident de développer de nouveaux formats plus compacts et polyvalents et de chercher de nouvelles applications des dispositifs microniques. Par ailleurs, l'évolution de la génomique dans les années 80 et l'apparition d'autres domaines de la microanalyse liées à la biologie moléculaire a nécessité des méthodes

d'analyses de haut débit, plus rapides et sensibles que les méthodes « traditionnelles ». Le quatrième et dernier antécédent, la biodéfense, est issue de la fin de la guerre froide aux Etats-Unis d'Amérique. En effet, les armes chimiques et biologiques sont devenues des menaces militaires et terroristes. Pour les contrer, la Defense Advanced Research Projects Agency (DARPA) du département américain de la défense a soutenu une série de programmes dans les années 90 visant à développer des systèmes microfluidiques destinés à détecter des menaces chimiques et biologiques. Ces programmes ont été le principal stimulant de la croissance rapide de cette technologie.

I.B.3. La course

C'est à partir de l'année 1990, et des travaux de A. Manz à propos de la chromatographie [22] que l'on se rend compte de la capacité considérable de la miniaturisation. C'est lui-même qui introduit le concept de μ TAS (Miniaturized Total Analysis System) [23] avec un dispositif d'analyse en silicium compact (25mm^2) comportant un prétraitement de l'échantillon, la séparation et la détection par électrophorèse et chromatographie. Ces mots μ TAS et Laboratoire sur Puce (Lab On Chip, LOC), étant en pratique synonymes, sont très fréquemment utilisés. Les conférences et journaux portant les mêmes noms sont les plus importantes dans le domaine de la microfluidique (le facteur d'impact du journal Lab on a Chip est 5,7).

De nombreuses études s'en suivent et des systèmes microfluidiques de toutes sortes sont développés dans les laboratoires : des micromélangeurs [24] [25], des systèmes de séparation électrophorétique [26] [27], des séparateurs diffusifs [28], des systèmes d'amplification d'ADN (Acide DésoxyriboNucléique) [29] [30], des microréacteurs chimiques [31]... Notons l'apparition de nouvelles techniques d'actionnement, comme les pompes électroosmotiques [32], permettant un contrôle précis des déplacements de fluides sans parties mobiles.

Le silicium et le verre étant des matériaux difficilement structurables, il a fallu trouver une autre technique de fabrication simple, rapide et peu chère. Le programme de défense américain a permis à l'équipe de G.M. Whitesides, alors professeur à l'Université de Harvard, de donner un grand coup d'accélérateur au domaine de la microfluidique. Grâce au principe de lithographie souple (ou encore Soft Lithography), il est devenu possible de mouler des dispositifs à base d'élastomères [33] [34]. L'élastomère le plus utilisé en microfluidique est le PolyDiMethylSiloxane (PDMS) et présente les avantages suivants :

- Prototypage très simple et rapide
- Possibilité de travailler à des échelles cellulaires
- Le coût de fabrication est faible comparé aux dispositifs à base de verre et/ou de silicium
- Possibilité de réaliser des dispositifs déformables dus à la souplesse de l'élastomère comme des valves ou des mélangeurs [35]

Les matières plastiques sont aujourd'hui fortement utilisées dans le domaine de la microfluidique. Celle-ci a donc pris un tournant décisif grâce à cette nouvelle technique de fabrication et de nombreuses équipes de recherches et start'up s'en sont emparées pour développer de nouveaux laboratoires sur puces. On découvre alors de nouvelles techniques expérimentales, d'analyses et de mesures mêlant différentes approches et technologies permettant de réaliser des microsystèmes tout aussi exotiques que nous verrons dans la prochaine partie. Avant d'aborder la physique mise en jeu dans nos systèmes, nous allons résumer les différentes approches propres à la microfluidique.

I.C. Les différentes approches microfluidiques

Depuis les années 1990, la microfluidique a connu un essor sans précédent. Un point clé de ce domaine de recherche est le transport de fluide. Il en existe deux grandes catégories que l'on nommera la microfluidique continue, plus ancienne, où le fluide est mis en mouvement dans des microcanaux avec un écoulement continu, et la microfluidique discrète ou digitale ou encore la microfluidique de goutte où ici, des microgouttes sont manipulées une à une. Bien que totalement différentes, ces deux technologies ont chacune les avantages et les inconvénients de la miniaturisation des systèmes mais peuvent néanmoins être complémentaires.

I.C.1. La microfluidique continue

Comme nous l'avons vu précédemment, la première approche microfluidique a consisté à utiliser les méthodes de fabrication de la microélectronique pour miniaturiser les dispositifs de manipulation classiques. Les premières publications présentent la miniaturisation de canaux et reposent sur le transport de liquide dans ces microcanaux.

I.C.1.1. Fabrication des microcanaux

I.C.1.1.1. Le microusinage de volume

Il existe différentes méthodes pour la réalisation de microcanaux. La première est le micro usinage de volume. Celle-ci consiste à recouvrir un substrat (en silicium ou en verre) par un masque ou une résine, puis de « graver », d'usiner, ce substrat par voie humide avec des produits chimiques sélectifs. L'autre possibilité est de graver avec une technique d'usinage comme la DRIE (Deep Reactive Ion Etching) plus lourde et lente à mettre en œuvre que les techniques chimiques (Figure I.3). On distingue deux types de gravure : la gravure isotrope qui

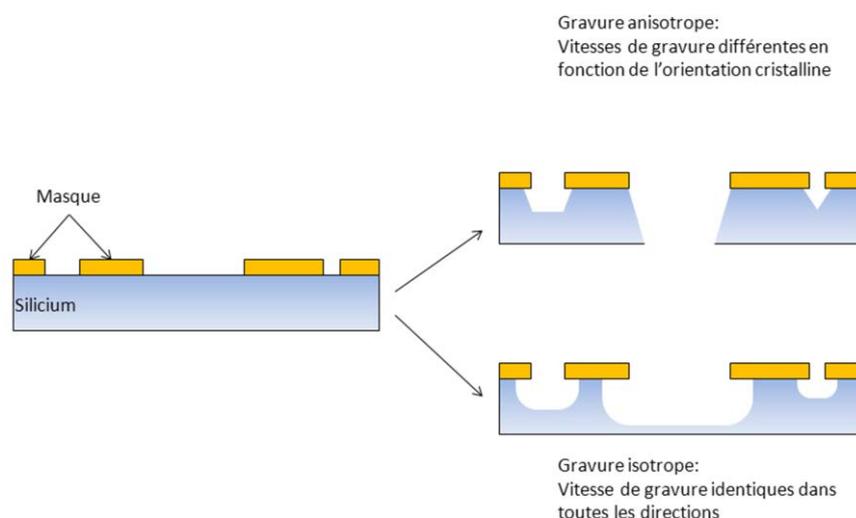


Figure I.3 : Exemple de géométries obtenues par usinage du silicium

engendre des vitesses de gravure identiques quelle que soit l'orientation cristalline et la gravure anisotrope qui induit des vitesses de gravure différentes en fonction de l'orientation [36] [37] [38] [39].

I.C.1.1.2. Le microusinage de surface

La deuxième technique est l'usinage de surface présenté Figure I.4. La principale différence avec l'usinage de volume réside dans le fait que le substrat est ici utilisé comme support mécanique et non comme matériau à structurer. Le microsystème final est obtenu par différents dépôts de plusieurs couches successives de matériaux [40]. Ces derniers sont souvent des métaux et/ou des couches d'accroches, déposés principalement par évaporation ou par pulvérisation, et des résines étalées par spin-coating puis structurées par lithographie qui permettront de réaliser les microsystèmes.

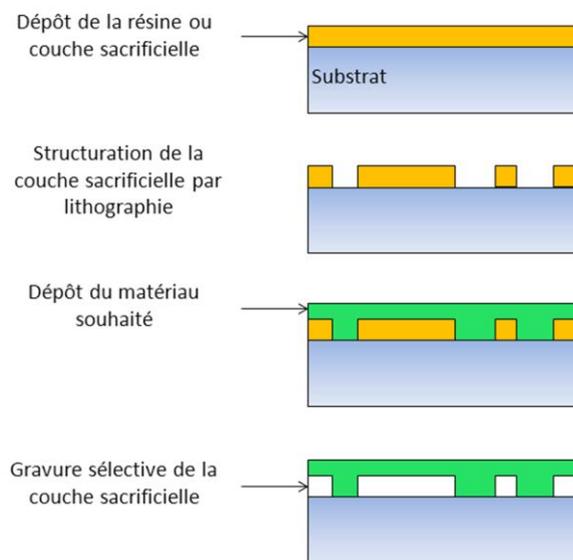


Figure I.4: Exemple du principe de l'usinage de surface

I.C.1.1.3. La technologie LIGA

De nouvelles techniques sont apparues suite à l'explosion de la miniaturisation notamment pour éviter l'utilisation de substrat en silicium et en verre. Ainsi, des techniques à base de polymères ont vu le jour et permettent la réalisation d'architectures complexes et difficiles à obtenir avec les techniques de fabrication classiques de la microélectronique. La LIGA, acronyme de RöntgenLithographie, Galvanoformung, Abformung (soit Lithographie, dépôt électrolytique et moulage), a été développée à la fin des années 1970 en Allemagne au Kernforschungszentrum Karlsruhe. La technique consiste à structurer une résine polymère de PMMA (PolyMethylMethAcrylate), plus connue sous le nom commercial Plexiglas. Cette résine est sensible aux rayons X et est irradiée à travers un masque comme le montre la Figure I.5a. Il suffit ensuite de la développer pour obtenir l'inverse du motif que l'on souhaite (Figure I.5b). Enfin vient une étape de croissance de métal par électrodéposition (Figure I.5c) avant de

dissoudre la résine restante devenue obsolète (Figure I.5d). On obtient ainsi une pièce en métal, souvent en nickel ou en or, que l'on utilise soit telle quelle, soit comme un moule permettant ainsi de réaliser des pièces en polymère. Cette technique, appelée LIGA X, possède plusieurs avantages comme la faible température du protocole ou l'obtention de systèmes à forts facteurs de forme. En effet, par l'intermédiaire des rayons X, il est possible de structurer le PMMA de plusieurs centaines de micromètre d'épaisseur. La microfluidique a ainsi profité des avantages de cette technique de fabrication pour réaliser des microsystèmes fluidiques [41] [42].

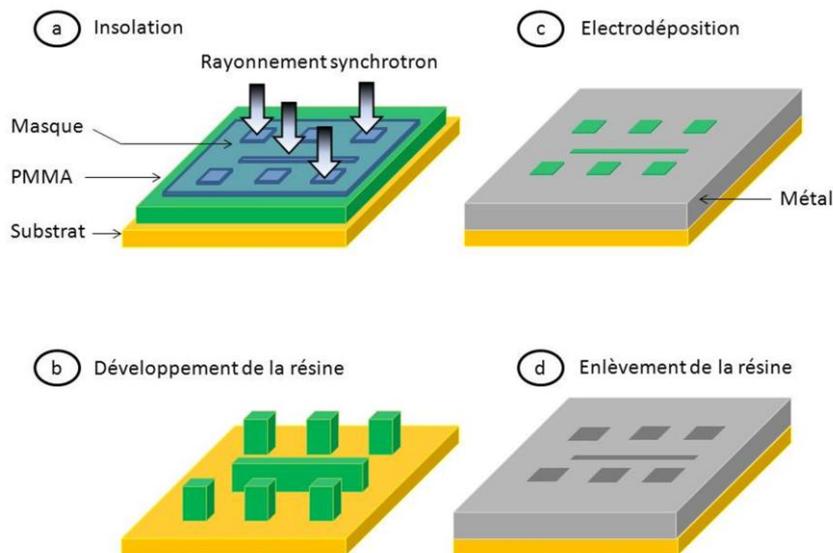


Figure I.5 : La technique de fabrication LIGA

Les principaux désavantages de cette technique reposent sur le masque d'insolation et l'utilisation d'un synchrotron pour la production des rayons X. En effet, le masque d'insolation est constitué d'une membrane, en graphite ou silicium ou encore en diamant, recouverte d'une couche absorbant les rayons X comme de l'or, du cuivre ou du nickel. La fabrication de ce type de masque engendre un double coût puisqu'il nécessite l'utilisation d'une lithographie UV et donc la fabrication d'un masque spécifique de lithographie UV. Pour les dispositifs à haute résolution et faibles dimensions, la fabrication du masque de LIGA X peut être effectuée par lithographie électronique. L'autre inconvénient est l'excitation des rayons X par un synchrotron qui peut se révéler lourde et coûteuse. C'est pourquoi une autre technique appelée LIGA UV a vu le jour. Le PMMA et la source de rayon X sont remplacés par une résine photosensible et une lampe UV à mercure. Toutefois, cette technique ne permet pas l'obtention de motifs d'épaisseurs équivalentes à la LIGA X.

I.C.1.1.4. La résine photosensible SU-8

Pour combler cette lacune, une autre technique a été développée avec des résines polymères photosensibles à fortes épaisseurs comme la SU-8. Celle-ci est peu coûteuse et simple à mettre en œuvre. Elle a été développée par IBM pour l'industrie de la

microtechnologie au début des années 1990 [43]. Cette résine est un bon substitut à la technologie LIGA. Elle permet d'obtenir des systèmes avec des épaisseurs de plusieurs centaines de micromètres comme des systèmes de faibles dimensions de l'ordre du μm [44] [45]. La structure finale peut être réalisée par lithographie électronique et/ou par lithographie UV [46]. De nombreux dispositifs microfluidiques ont vu le jour grâce à ce polymère et celui-ci continue d'inspirer de nombreuses équipes [47] [48] [49].

I.C.1.1.5. Le moulage de polymères

La dernière technique de fabrication est le moulage de polymère. Comme vu précédemment, cette technique est simple à mettre en œuvre et permet des prototypages rapides et peu coûteux. Le polymère le plus utilisé est le PDMS présentant de nombreux atouts comme la biocompatibilité [50], des propriétés optiques de transparence, des propriétés mécaniques comme la flexibilité et la facilité de réalisation de prototypes. La fabrication des pièces en PDMS est réalisée par moulage. Le polymère est versé dans un moule fabriqué par les techniques précédentes d'usinage de volume, de surface, la technique LIGA ou même des moules en SU-8. Après polymérisation, le PDMS est démoulé et prêt à être utilisé. La résolution de microsystèmes à base de PDMS peut atteindre quelques nm en optimisant le protocole de fabrication [51]. L'avantage de ce polymère est qu'il est simple à coller sur une surface en verre. En effet, un traitement par plasma d'oxygène ou d'ozone permet de créer des liaisons OH en surface. Ensuite, un contact avec le verre ou d'autres types de substrats engendre un collage irréversible et étanche [52]. Ceci permet de fabriquer des dispositifs en PDMS multicouche et de profiter des possibilités technologiques du substrat verre comme l'utilisation des dépôts métalliques, de dépôt d'oxyde ou de fonctionnalisation de surface [53].

Récemment, d'autres polymères, comme la résine Polyurethane Methacrylate, ont été identifiés comme complémentaire au PDMS. Ces « nouvelles » résines ont des propriétés similaires de fabrication de prototype et en possèdent d'autres comme une meilleure résistance à certains solvants ou une meilleure rigidité [54].

I.C.1.2. Les méthodes de transport de liquide en microfluidique continue

En microfluidique et depuis l'étude des premiers systèmes, de nombreux travaux ont été publiés concernant les méthodes de transport et d'actionnement de fluide dans des microcanaux. La première idée que l'on peut avoir est de créer un gradient de pression entre l'entrée et la sortie du microcanal. Pour cela, une simple pompe permet de mettre en mouvement les liquides dans des microcanaux. Certaines entreprises, comme BioTray, Fluigent, Coleparmer ou encore Elveflow proposent ce type de système capable de générer et de contrôler indépendamment plusieurs flux de liquides. Par ailleurs, la volonté d'intégrer toutes les fonctions nécessaires à la microfluidique, telles que les pompes ou les valves, sur une même puce a mené à miniaturiser celles-ci. Les micropompes ont ainsi fait l'objet de nombreux travaux. Il en existe deux types : celles mécaniques avec des parties mobiles

agissant sur le liquide et engendrant un écoulement de Poiseuille, et celles « énergétiques » où une énergie électrique ou magnétique est transférée au fluide induisant le déplacement de celui-ci.

I.C.1.2.1. Les micropompes mécaniques

I.C.1.2.1.1. Principe

Dans le grand domaine qu'est aujourd'hui la microfluidique, les micropompes représentent un axe de recherche très étudié [55] [56]. Les premiers dispositifs expérimentaux datent du milieu des années 1970 [57] [58] et le développement de nouveaux systèmes n'a fait que croître. Le principe est basé sur un diaphragme en mouvement créant soit une surpression soit une dépression dans une chambre et permettant de faire circuler le fluide par l'intermédiaire de deux valves comme le montre la Figure I.6. Au repos, les deux valves V1 et V2 sont fermées et le diaphragme est en position intermédiaire. Lors d'une phase de dépression, la pression est inférieure à la pression d'équilibre du système ce qui provoque l'ouverture de la valve V1, la fermeture de la valve V2 et laisse entrer le liquide dans la chambre. Puis vient une phase de surpression où la pression devient supérieure à une valeur critique permettant la fermeture de la valve V1 et l'ouverture de la valve V2 pour ainsi éjecter le liquide.

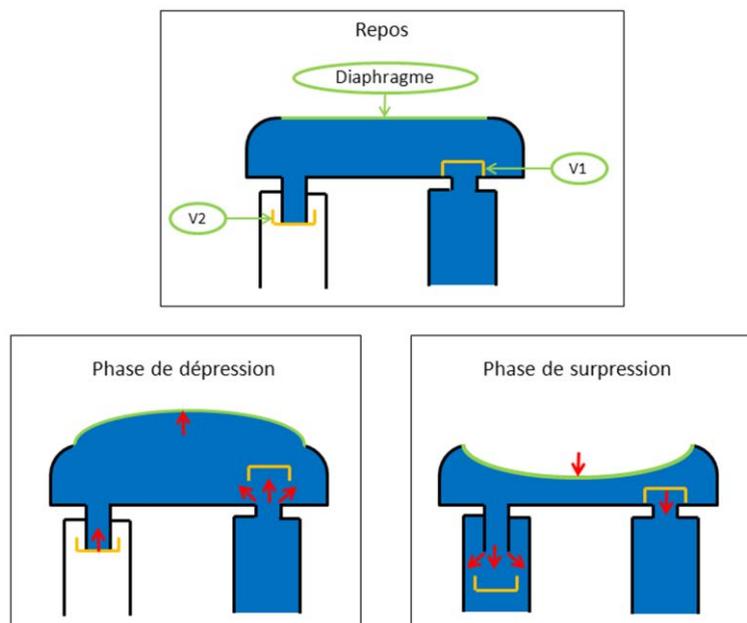


Figure I.6 : Principe de fonctionnement d'une micropompe mécanique

I.C.1.2.1.2. Mécanismes d'actionnement

Afin d'actionner les diaphragmes des micropompes, il existe de nombreuses solutions que l'on peut trouver dans la littérature. L'une d'entre elles est basée sur des matériaux piézoélectriques générant des changements de forme lorsqu'ils sont alimentés par un courant

électrique. Les contraintes exercées par le matériau, collé au-dessus du diaphragme, peuvent être utilisées pour pomper des liquides. Cette méthode de pompage présente plusieurs avantages comme une mise en œuvre relativement simple, d'importantes forces pour déformer le diaphragme et de faibles temps de réponse. Cependant, elles nécessitent de fortes tensions d'alimentation car les déformations sont de l'ordre de quelques pourcents ce qui limite le débit des micropompes. Certains des premiers modèles de micropompes piézoélectriques ont été micro-usinés à partir de substrat de silicium par microusinage de volume [59] [60]. Plus récemment, le développement de micropompes piézoélectriques a évolué vers l'utilisation de matériaux optiques transparents, à faible coût, comme le PDMS et le PMMA, à la place des substrats en verre ou silicium plus difficiles à usiner [61]. De plus, le diaphragme peut lui aussi être fabriqué en PDMS [62].

Une seconde technique est basée sur l'effet Joule : c'est l'actionnement thermo-pneumatique. Cette technique est une bonne alternative à celle basée sur l'effet piézoélectrique. En effet, il est possible d'obtenir de grandes déflexions du diaphragme, de l'ordre de la centaine de μm [63], et ce avec de faibles tensions. Une résistance électrique est placée au-dessus du diaphragme dans une chambre hermétique contenant du gaz (souvent de l'air) comme le montre la Figure I.7 issue de [13]. Ainsi, l'air est chauffé et se dilate créant une surpression à l'intérieur de la chambre et poussant le diaphragme. Ce type de technique permet la réalisation de dispositifs avec des dimensions très compactes comme le relève B.Büstgens [64]. Cependant, l'inconvénient principal est la fréquence de travail très faible par rapport à l'actionnement piézoélectrique due aux propriétés lentes de relaxation thermique.

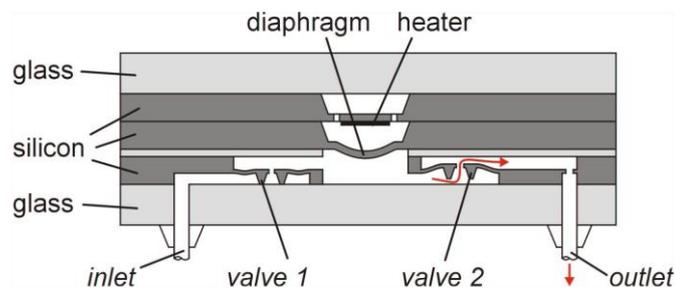


Figure I.7 : Vue en coupe du dispositif de van de Pol *et al.* [13] : Une micropompe thermo-pneumatique

Une troisième technique est l'actionnement électrostatique très utilisé dans le monde des MEMS car la fabrication de ces dispositifs est généralement considérée comme facile. Le schéma de principe de la première micropompe électrostatique de Zengerle *et al.* [65] est présenté à la Figure I.8. L'actionneur (actuation unit) est constitué de deux puces de silicium qui incorporent le diaphragme de la pompe, recouvert d'une électrode métallique, et d'une contre-électrode fixe dans une configuration de type condensateur. L'application d'une tension suffisamment élevée provoque l'attraction électrostatique du diaphragme vers la contre-électrode permettant l'entrée du liquide dans la chambre de pompage. Ensuite, après « décharge » du condensateur, le diaphragme de la pompe revient dans sa position de repos

en éjectant le fluide par l'intermédiaire de la valve de sortie. Les principaux avantages de ces micropompes sont nombreux : Nous pouvons citer une faible consommation électrique (8mW) [66], un fonctionnement à des fréquences élevées pour ce type de pompes (de 0,1Hz à plusieurs centaines de hertz) dues au temps de réponse faible des valves et des diaphragmes et un contrôle précis de la déformation du diaphragme par la tension d'alimentation. Une autre possibilité originale de fonctionnement de ces micropompes est la réversibilité de l'écoulement. En effet, selon la fréquence de travail et le déphasage des valves d'entrées et de sorties, il est possible d'inverser le flux du fluide. Par contre, ces micropompes nécessitent une tension souvent élevée (100 à 200V) pour obtenir des débits raisonnables ($30\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}$) sachant que le déplacement du diaphragme est faible [66]. Cet inconvénient peut devenir intéressant dans des applications où le contrôle précis d'injection de fluide est nécessaire.

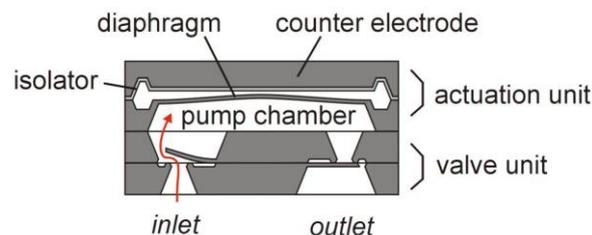


Figure I.8 : Principe de fonctionnement de la micropompe électrostatique de Zengerle *et al.* [65]

La diversité des modes d'actionnement et des techniques de fabrication démontre l'intérêt porté à ces dispositifs et la pluridisciplinarité des microsystèmes en général [67]. On peut noter l'étude d'autres types d'actionnement dont nous ne détaillerons pas le principe mais où le lecteur pourra se référer: les micropompes à membranes pneumatiques où une multitude de « designs » existent [68], celles à alliage à mémoire de forme [69] [70] ou encore les micropompes électromagnétiques [71]. Chacune dispose d'avantages et d'inconvénients suivant l'application ciblée. N'oublions pas qu'en parallèle, les microvalves se développent. En effet, on trouve de nombreuses publications traitant de ce sujet qui est complémentaire à la fabrication de nouvelles micropompes [68] [71].

1.C.1.2.1.3. Écoulement engendré de Poiseuille

Ces pompes et micropompes intégrées dans un système provoquent un écoulement dit de Poiseuille dans un microcanal. Supposons que nous sommes dans le cas d'un écoulement laminaire d'un fluide newtonien dans un canal de forme cylindrique de rayon R soumis à un gradient de pression (Figure I.9). Cet écoulement est nommé écoulement de Poiseuille et est en tout point parallèle aux parois. La condition de non glissement implique qu'aux échelles macroscopiques, la vitesse du fluide est supposée nulle aux parois. De plus, la pression ne varie pas avec la distance à la paroi. Ceci implique que le fluide s'écoule selon un champ de vitesse parabolique : La vitesse est nulle aux parois et est maximale au centre du canal. La

vitesse $v_{(r,z,\theta)}$ au point $P_{(r,z,\theta)}$ est parallèle aux parois et orientée suivant l'axe z (θ étant la troisième coordonnée cartésienne). Celle-ci est donnée par la relation suivante :

$$v_{(r,z,\theta)} = v_{(r)} = v_{max} \left(1 - \frac{r^2}{R^2} \right) \quad (1.1)$$

avec la vitesse maximum v_{max} en $m.s^{-1}$ liée au gradient de pression ΔP en Pa, à la viscosité dynamique η en Pa.s et au rayon R du tube en m :

$$v_{max} = \frac{R^2}{4\eta} \cdot \Delta P \quad (1.2)$$

De plus, le débit D en $m^3.s^{-1}$ d'un tuyau de longueur L en m est donné par la Loi de Poiseuille suivante :

$$D = \frac{\pi R^4}{8\eta L} \Delta P \quad (1.3)$$

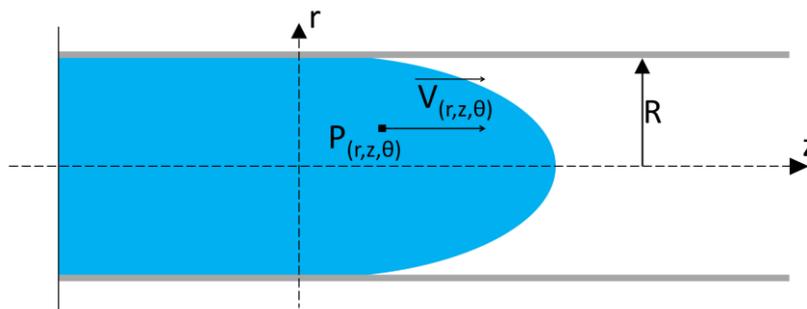


Figure I.9 : Ecoulement de Poiseuille

I.C.1.2.1.4. Limites

Cette dernière équation (1.3) montre bien la difficulté à conserver un débit constant avec la diminution de la section des microcanaux. En effet, les différences de pression à appliquer deviennent vite très importantes. Par exemple, nous pouvons calculer le débit pour un microcanal de forme cylindrique de diamètre $100\mu m$, d'une longueur de $5mm$, avec de l'eau de viscosité $1mPa.s$ et une différence de pression de $1kPa$. On trouve un débit de $4,91 \cdot 10^{-10} m^3.s^{-1}$ équivalant à $491nL.s^{-1}$. En divisant par un facteur 10 l'échelle du cylindre, c'est-à-dire un microcanal de $10\mu m$ de diamètre, on obtient un débit de $49,1pL.s^{-1}$ soit divisé par 10000 : Autrement dit, il serait nécessaire d'appliquer une différence de pression 10 000 fois plus grande pour obtenir le même débit : soit $10\,000\,000Pa$ dans ce cas équivalent à $100bar$. On se rend vite compte des limites de cette technique qui présente une barrière à la diminution des dimensions pour ce type de microsystème.

I.C.1.2.2. Les micropompes « énergétiques »

Pour s'affranchir des problèmes liés aux diminutions de taille des microsystèmes, il existe d'autres types de micropompes de principes de fonctionnement différents. En effet, contrairement aux précédentes, les micropompes énergétiques ne possèdent pas de partie mécanique. Elles sont basées sur la transformation d'énergie non mécanique, souvent une tension ou un courant électrique, en un mouvement du liquide dans un microcanal. Nous allons présenter différents principes de ces micropompes et nous verrons qu'elles s'emploient néanmoins avec des liquides particuliers.

I.C.1.2.2.1. L'actionnement électrohydrodynamique

Il est connu depuis longtemps qu'un fluide soumis à un champ électrique peut être mis en mouvement. Pour déterminer les forces mises en jeu, considérons un élément de fluide de masse volumique ρ , de permittivité ε et supposons qu'il contient une densité volumique de charge q_E et est soumis à un champ électrique E . Alors la force électrohydrodynamique (EHD) F engendrée par E sur cet élément est donnée par :

$$F = q_E E - \frac{1}{2} |E|^2 \nabla \varepsilon + \frac{1}{2} \nabla \left[q_E |E|^2 \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T \right] \quad (1.4)$$

Le premier terme de l'équation représente la force de Coulomb qui est la force électrique agissant sur les charges libres dans un liquide. Le second terme, appelé force diélectrique, est une force de polarisation induite dans le liquide dont le module est une fonction du gradient de permittivité du liquide. Elle est bien plus faible que la force de Coulomb (10^3 fois) [73]. Le troisième terme est la pression d'électrostriction. Elle ne joue aucun rôle dans la mise en mouvement du fluide. Elle est, par définition, la déformation non uniforme d'un substrat lorsqu'il est soumis à un champ électrique. Les forces à l'origine du mouvement du fluide sont donc la force électrique et la force diélectrique. La force F devient alors :

$$F = q_E E - \frac{1}{2} |E|^2 \nabla \varepsilon \quad (1.5)$$

La force de Coulomb étant la plus forte, la présence de charges est nécessaire pour obtenir une force EHD capable de déplacer le fluide. Le mouvement de ces charges, via les liaisons visqueuses, entraîne le fluide. Pour cela, nous pouvons créer cette charge par injection unipolaire dans les liquides polaires ou par le phénomène de dissociation et de recombinaison dans les liquides non polaires. Nous pouvons également utiliser des charges créées naturellement comme en électrothermie (charges volumiques) ou en électro-osmose (charges surfaciques). L'électrothermie existe lorsqu'un gradient de température est couplé à un champ électrique continu ou alternatif. L'électro-osmose est basée sur la manipulation de la densité de charge électrique par un champ électrique continu ou alternatif engendrée dans la double

couche électrique entre un solide isolant hydrophile et un liquide. On distingue donc trois types de pompes [74]:

- la pompe EHD à injection
- la pompe électrothermique DC et AC
- la pompe électro-osmotique DC, AC basse fréquence et AC haute fréquence (EHD à induction). Nous allons présenter son principe dans la partie qui suit.

I.C.1.2.2.2. L'électro-osmose

L'électro-osmose (EO) est une technique de mise en mouvement de liquide provoquée par l'application d'un champ électrique à un canal dont les parois sont chargées [75] [76]. La plupart des surfaces acquièrent spontanément une densité de charge finie lorsqu'elles sont en contact avec une solution aqueuse. Dans le cas de contact entre le verre (ou silice) et un liquide électrolytique, la surface du verre se charge en raison des groupes silanols de surface dont les protons « s'échappent ». La paroi, chargée négativement, attire les cations du liquide alors que les anions sont repoussés. Deux sous-couches apparaissent aux bords de la paroi. La première, appelée couche de Stern, comprend les cations absorbés du liquide et la seconde, nommée couche de Gouy-Chapman, comporte des ions majoritairement positifs et libres de diffuser (Figure I.10). Lorsqu'un champ électrique parallèle aux parois est appliqué, celui-ci met en mouvement cette deuxième couche mobile qui entraîne les autres molécules électrolytiques de la solution. Les forces de Coulomb permettent alors de déplacer le liquide dans le microcanal. Cette technique est très utilisée avec des solutions électrolytiques.

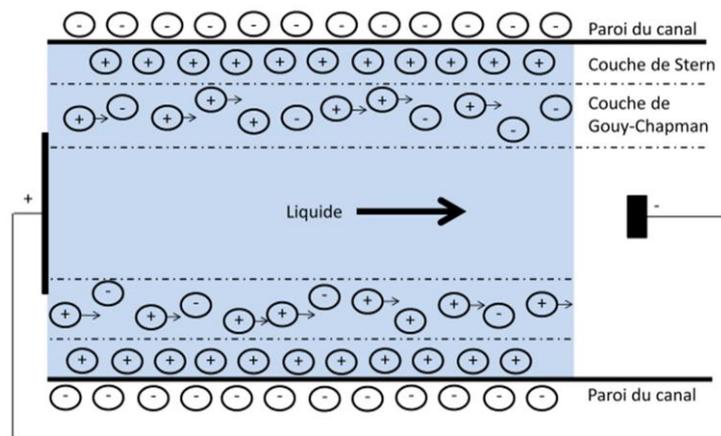


Figure I.10 : Principe d'actionnement par électro-osmose

I.C.1.2.2.3. L'actionnement magnétohydrodynamique

Le déplacement de liquide peut également être réalisé en utilisant une micropompe magnétohydrodynamique (MHD). Un courant électrique, de l'ordre de la centaine de mA, est injecté dans la solution ionique à l'intérieur du microcanal. Un champ magnétique de quelques mT, appliqué de manière transversale au plan formé par la direction du courant électrique et du canal, est soumis au liquide : La force de Lorentz permet alors d'induire un écoulement du

liquide [77]. Les vitesses d'écoulements sont fonctions de la conductivité de la solution. Elles peuvent atteindre plusieurs dizaines de $\mu\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$. L'avantage de ce type de micropompe est la facilité à modifier le sens de l'écoulement simplement en inversant le courant électrique ou le sens du champ magnétique. Cependant, ce mode d'actionnement n'est adapté qu'aux liquides conducteurs.

1.C.1.3. Conclusion partielle

Sans avoir mentionné toutes les techniques, nous avons vu les principales permettant d'actionner des fluides dans des microcanaux. La réduction de la section des canaux provoque des complications propres dues en particulier à une forte influence des effets de surface. Ces derniers sont causés par l'augmentation du ratio surface/volume qui, par la même occasion, accentue les problèmes de contamination. Dans certains cas, la difficulté à connecter des microcanaux au système environnant peut aussi limiter l'intérêt de ces laboratoires sur puce. Une autre approche a ainsi été développée pour contourner certaines de ces difficultés : La microfluidique discrète.

1.C.2. La microfluidique discrète

On parle de microfluidique discrète lorsque le liquide à contrôler se trouve sous forme de gouttes de quelques picolitres à quelques microlitres : Chacune d'entre elles constitue ainsi un volume réactionnel indépendant. Il existe plusieurs techniques :

- L'une, en milieu « fermé » dans des canaux, souvent appelé microfluidique diphasique (ou multiphasique dans le cas d'émulsion multiple), consiste à stabiliser des gouttes individuelles dans un flux continu.
- La seconde, en milieu « ouvert », diffère de la première. Les gouttes sont posées sur un support plat et sont donc contrôlables indépendamment sur tout le plan formé par le dispositif. Il est difficile d'établir un inventaire exhaustif de ces techniques tant il en existe et que les innovations foisonnent [78]. Nous allons donc nous concentrer sur les principales.

1.C.2.1. La microfluidique discrète en milieu fermé (microcanaux)

1.C.2.1.1. Introduction et applications

L'émulsion est une technique permettant de rendre stable deux liquides non miscibles. Celle-ci est très utilisée dans les domaines de la cosmétique, des industries agro-alimentaires ou pharmaceutiques. Les émulsions sont présentes dans une multitude de produits de la vie courante. Elles peuvent être naturelles comme dans le cas du lait ou du jaune d'œuf ou bien fabriquées artificiellement dans le cas des sauces, des crèmes, des gels ou encore des peintures. On se rend donc bien compte de l'importance des émulsions dans l'industrie biologique et chimique ainsi qu'alimentaire.

I.C.2.1.2. Principe

L'une des techniques les plus répandues consiste à réaliser l'émulsion d'un liquide dans un autre en utilisant un surfactant (appelé aussi tensio-actif). Le surfactant est une molécule amphiphile possédant une extrémité hydrophobe et l'autre hydrophile. Il possède une affinité particulière pour les interfaces de type eau/huile et huile/eau et donne la capacité d'abaisser l'énergie libre de ces interfaces. Ainsi, des gouttelettes de phase dispersée, de l'ordre de la dizaine de nanomètres à quelques centaines de microns, sont générées dans une phase continue en microcanal (Figure I.11). Nous remarquons dans la littérature qu'il existe de nombreux types d'émulsion. La principale est de type eau dans huile [79] [80], c'est-à-dire que des gouttes d'eau sont générées dans un flux d'huile : L'eau est la phase dispersée tandis que l'huile est la phase continue. Il n'est pas rare d'en voir d'autres comme l'émulsion d'huile dans l'eau (Figure I.11) [81], de PDMS dans l'eau et l'inverse, d'eau dans du dodecane... [81]. Il existe une multitude de possibilités pour l'émulsion d'un liquide dans un autre permettant l'accroissement des champs d'applications et garantissant la pérennité de ce type de dispositif.

Il existe différentes techniques pour réaliser une émulsion. Les principales sont les jonctions en T présentées à la Figure I.11 et la Figure I.12 a). Celles-ci ont été mises en œuvre pour la première fois par Thorsen *et al.* [83] pour la génération de vésicules en microcanaux. Garstecki *et al.* [84] ont proposé une description du mécanisme de génération de la goutte. Ici, la phase continue circule directement dans le canal principal et la phase dispersée arrive par un second canal positionné perpendiculairement au canal principal (Figure I.11). Celle-ci entre progressivement dans le canal principal en subissant le cisaillement de la phase continue dans le sens de l'écoulement. Un coude se forme et rétrécit avec l'avancée de la phase dispersée jusqu'à ce que celui-ci casse. La microgoutte est ensuite entraînée dans le sens de l'écoulement de la phase continue. C'est une des techniques les plus simples et certainement la plus utilisée pour générer des microgouttes dans des canaux. Il existe une variante de cette technique qui est la jonction Y dont le canal de la phase dispersive n'est plus perpendiculaire au canal principal mais possède un angle inférieur à 90°.

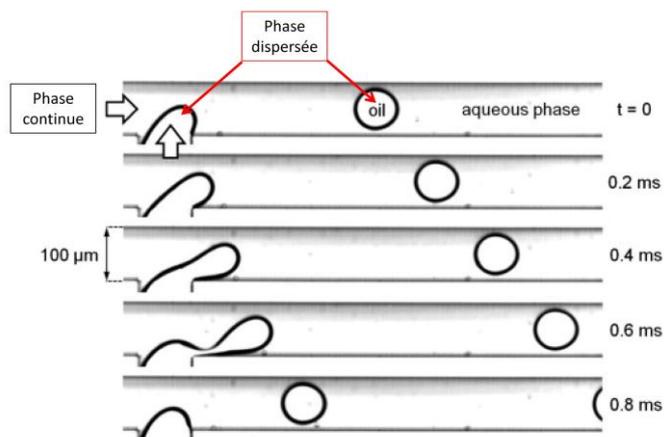


Figure I.11 : Exemple d'émulsion huile/eau [81]

La jonction en croix diffère légèrement de la jonction en T (Figure I.12 b) [85]. Ici, la phase dispersée s'écoule dans le canal principal et la phase continue vient perpendiculairement de chaque côté. Elle exerce un cisaillement sur la phase dispersée ce qui la pince jusqu'au décrochement de la goutte.

Une troisième technique est le « Flow Focusing », ou autrement dit la focalisation hydrodynamique développée par Ganan-Calvo [86] puis par Anna *et al.* [87] (Figure I.12 c). Comme précédemment, la phase continue pince la phase dispersée de chaque côté. Ces trois courants s'écoulent vers un unique rétrécissement provoquant un effet entonnoir. La vitesse des phases est alors plus élevée à l'approche de ce goulot et la phase dispersée subit un cisaillement bien plus important.

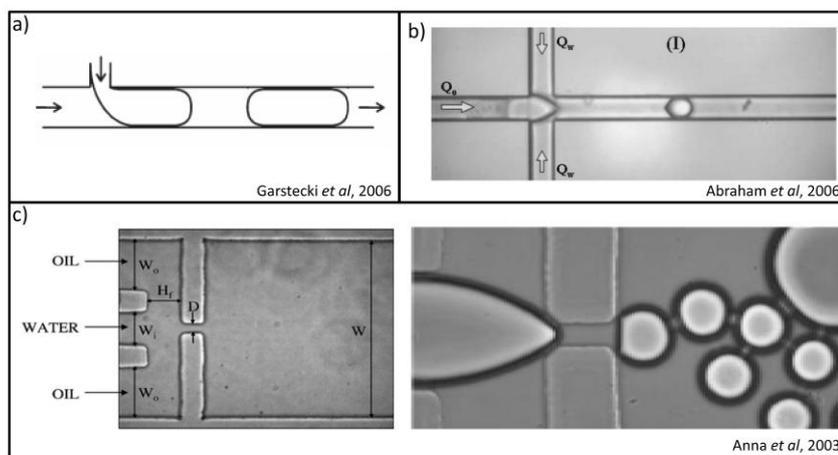


Figure I.12 : Quelques techniques de création d'émulsions : La jonction en T (a), la jonction en croix (b), et la technique de « flow focusing » (c)

D'autres techniques existent permettant de réaliser une émulsion. Nous pouvons citer la méthode de co-courant où le microcanal de la phase dispersée est entouré par celui de la phase continue [88]. Ici, la contrainte de cisaillement s'exerce tout autour du fluide à disperser. Il existe aussi la technique de « Microchannel Emulsification » la phase dispersée traverse une série de microcanaux de différentes dimensions [89]. Se forme ensuite une goutte « cueillie » par la phase continue qui s'écoule perpendiculairement. Pour réaliser une émulsion, de nombreux paramètres sont à prendre en compte. Le débit et la viscosité des fluides, le diamètre des microcanaux, la mouillabilité et la tension interfaciale sont les principaux éléments qui influencent l'émulsion de microgouttes. De ces paramètres découlent trois modes de génération d'écoulement présentés à la Figure I.13 [90]. Le régime de « squeezing » où des gouttes, de forme ovale, occupent toute la largeur du canal, le régime de « dripping » provoque des microgouttes, de forme sphérique, de dimensions proches de celles du microcanal et celui de « jetting » qui caractérise un écoulement en forme de jet d'encre. Dans ce cas les gouttes générées sont bien plus petites que le diamètre du canal avec une fréquence très élevée pour atteindre plusieurs milliers de gouttes par seconde [91]. Un filet de phase dispersée se crée dans le canal et la génération de gouttes a lieu à une distance plus importante de l'intersection des deux phases que pour les deux cas précédents [92].

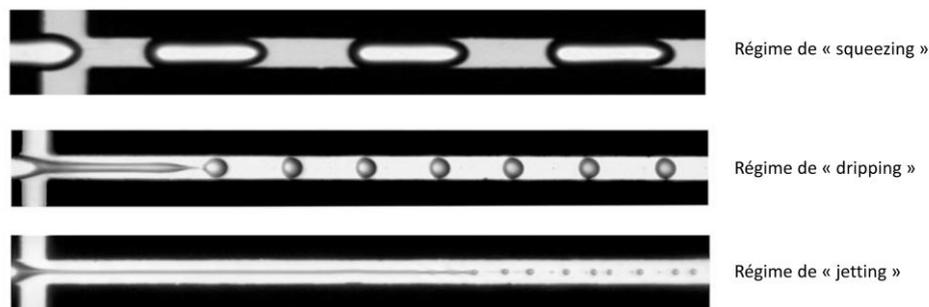


Figure I.13 : Les modes de génération [90]

I.C.2.1.3. Avantages et limites

Le principe de l'émulsion de gouttes présente plusieurs avantages. Un des principaux est le mélange interne au sein des gouttes. Ces dernières glissent par rapport à la phase continue, les séparant des parois du canal, avec une vitesse légèrement supérieure. Les conditions de continuité à l'interface provoquent des recirculations que nous pouvons visualiser sur la Figure I.14 issue de [93]. Deux produits (Eau et Eau + colorant) constituent la phase dispersée et celle continue est de l'huile. Cette structure en U permet, avec ce type d'écoulement, d'accélérer le mélange interne et donc améliorer l'efficacité de réaction entre les produits constituant la phase dispersée. Un autre avantage des techniques d'émulsion est la possibilité de générer jusqu'à plusieurs milliers de microgouttes par seconde [91] [94]. Cette capacité permet de réaliser de nombreuses opérations de synthèse et d'analyse en parallèle et à haut débit. En plaçant en série plusieurs jonctions, l'émulsion double [95] [96] et multiple [97] est réalisable. Cela signifie la multiple encapsulation de fluide : une ou plusieurs microgouttes sont « enfermées » dans un premier liquide qui lui-même est émulsifié dans un second... La Figure I.15 présente ce type d'émulsion et montre par exemple la possibilité d'emprisonner différents réactif dans une même goutte avant de les faire réagir ensemble ou encore la possibilité de piéger une ou plusieurs cellules dans une même goutte avant une réaction ou une analyse. Un autre atout de cette technique est la capacité à créer des gouttes de volume, et donc de taille, égales. En effet, l'indice de polydispersité représentant la variation de la taille des microgouttes ne dépasse pas 5% [81] [88]. Un dernier avantage de l'émulsion est le risque très faible de contamination inter-goutte et du canal. En effet, la goutte étant « piégée » dans un

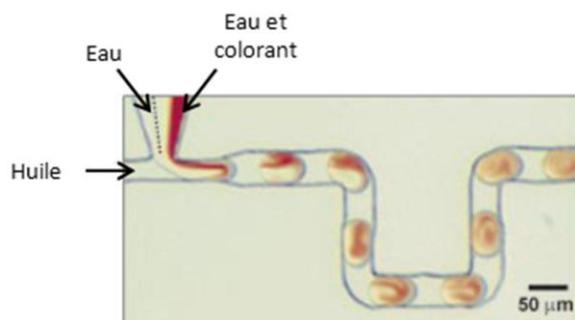


Figure I.14 : Mélange interne à la goutte d'après [93] pour une émulsion de type eau et eau + colorant dans de l'huile

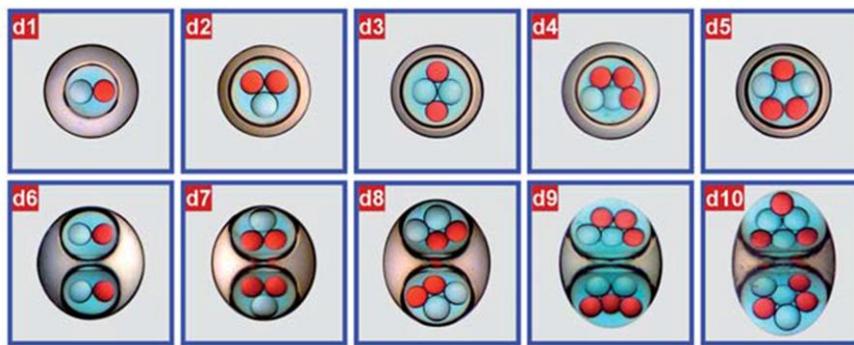


Figure I.15 : Emulsions multiples issues de [97]

flux continu, elle ne peut ni interagir avec les parois du canal, ni avec les autres gouttes environnantes si les propriétés de l'émulsion sont bien définies.

Cependant, quelques inconvénients subsistent. En effet, lors de l'émulsification se créent des gouttes parasites, appelées aussi gouttes satellites, de très faibles volumes vis-à-vis de la goutte principale. Celles-ci sont souvent indésirables car elles peuvent contaminer des échantillons, une réaction ou une analyse. Cependant, des études ont eu lieu permettant de filtrer passivement ces gouttes parasites [98]. A travers un système double couche en PDMS, les gouttes satellites sont séparées des principales, assurant la purification de l'écoulement. Il est aussi possible d'utiliser ces gouttes satellites filtrées pour la production d'émulsions monodisperses submicroniques. La séparation des phases est aussi une difficulté majeure de cette technique microfluidique. En effet, il est important de pouvoir les séparer afin, par exemple, de réaliser l'analyse des produits de la réaction ou simplement de les garder et/ou les stocker pour un post-traitement.

1.C.2.2. La microfluidique discrète en milieu ouvert

Comme nous l'avons introduit précédemment, une seconde méthode microfluidique permet d'interagir avec des gouttes. Il s'agit de la microfluidique discrète en milieu ouvert. Les gouttes ne se trouvent plus dans des canaux mais sur un substrat plan. Un avantage considérable est la possibilité de déplacer indépendamment chaque goutte en deux dimensions par rapport aux méthodes en canaux où les gouttes suivent une trajectoire définie au moment de la conception. De plus, celle-ci permet de s'affranchir d'importants moyens d'actionnement (comme des pompes ou des valves) nécessaires lorsque l'on travaille avec des microcanaux. Un autre grand atout de cette méthode est la capacité d'intégrer de nombreuses fonctions autres que le simple déplacement et blocage du fluide. En effet, il est simple de réaliser toute une série d'opérations sur les liquides : injection, division ou coalescence de gouttes, mélange de fluides, dosage de réactifs, extraction ou identification de substances, récupération des produits [78]. Il existe différentes techniques afin d'interagir avec des volumes discrets de liquide. Nous n'allons pas toutes les aborder mais nous pouvons citer l'électromouillage sur diélectrique basé sur l'électrohydrodynamique, les ondes élastiques de

surface basées sur l'effet piézoélectrique, la thermocapillarité basée sur l'effet Marangoni [99], la microstructuration de surface asymétrique [100], plus récemment le contrôle de liquide par la lumière [101]... Avant de présenter la technique basée sur les ondes élastiques de surface, que nous avons retenue, nous allons tout d'abord présenter les caractéristiques d'une des techniques les plus utilisées : la technique EWOD (ElectroWetting On Dielectric).

I.C.2.2.1. La technique d'électromouillage sur diélectrique (EWOD)

I.C.2.2.1.1. Historique, principe et premières applications

Les premières études datent de 1875 par Lippmann qui étudie l'électromouillage du mercure et détermine qu'une tension électrique extérieure modifie les charges de la double couche et donc la tension de surface [102]. On voit apparaître pour la première fois le terme électromouillage au début des années 1980 [103] [104] suite à l'observation de la modulation de l'angle de contact par un champ électrique sur un polymère isolant [105]. Le précurseur de la recherche actuelle sur l'électromouillage est B. Berge qui publie les premières expériences et analyses du phénomène en 1993 [106]. La technique d'électromouillage sur diélectrique est basée sur le principe de la modulation de la tension interfaciale entre un liquide et une électrode recouverte d'une couche diélectrique. Lorsqu'un champ électrique est appliqué entre une goutte et une électrode enterrée, les forces électrostatiques agissent sur les ions présents dans la goutte permettant une réduction de l'angle de contact entre le solide et le liquide (Figure I.16). Comme l'électro-osmose, une double couche électrique se forme à l'interface liquide/solide et lors de l'application du potentiel électrique, la charge de la double couche change faisant varier la tension de surface solide/liquide et par conséquent l'angle de contact. Ce dernier est défini par l'équation suivante en fonction de la tension appliquée U :

$$\cos \theta_e = \cos \theta_0 + \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{d \gamma_{lv}} U^2 \quad (I.6)$$

où θ_0 est l'angle de contact initial défini par l'équation d'Young, d est l'épaisseur de la couche isolante, ε_0 et ε_r sont les permittivités du vide (ou du gaz environnant) et la permittivité relative du revêtement isolant respectivement et γ_{lv} la tension de surface entre le liquide et le gaz. L'angle de contact statique n'est pas unique en pratique car les matériaux présentent une rugosité de surface qui entraîne un phénomène d'hystérésis [107]. Il existe alors un angle d'avancée θ_a et de retrait θ_r et $\theta_a < \theta_r$. Dans le cas de l'électromouillage sur isolant, l'angle de contact θ_e est défini par l'équation suivante :

$$\cos \theta_a + \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{d \gamma_{lv}} U^2 < \cos \theta_e < \cos \theta_r + \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{d \gamma_{lv}} U^2 \quad (I.7)$$

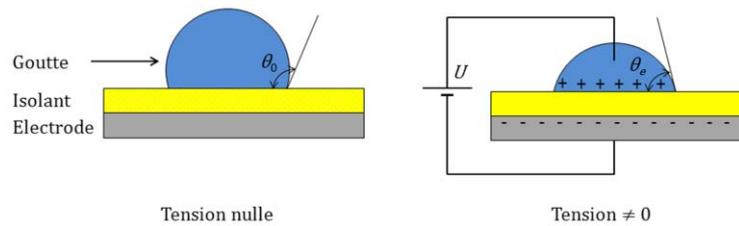


Figure I.16: Effet de l'électromouillage

De nombreuses applications découlent de l'électromouillage. Nous pouvons citer les travaux de Beni *et al.* à propos d'affichage à électromouillage [103] [104], ceux de Berge *et al.* ainsi que de Kwon *et al.* à propos de lentille à focale variable [108] [109], ceux de Lee *et al.* concernant les micromoteurs [110] et enfin ceux de Matsumoto *et al.* [111], Colgate *et al.* [111] et Yun *et al.* [113] à propos de la réalisation de micropompes.

1.C.2.2.1.2. La mise en mouvement de gouttelettes

L'idée d'actionner des gouttes à partir de l'électromouillage est issue de Pollack *et al.* [114] [115] ainsi que de Lee *et al.* [116]. Bien que très intéressants, les dispositifs développés permettaient un déplacement des gouttes suivant un axe linéaire. Aujourd'hui, la fabrication d'une matrice d'électrodes permet de déplacer des gouttes d'électrode en électrode suivant deux directions [117] [118] [119] [120] [121]. Pour ce faire, il existe deux types de configuration :

- La configuration « fermée » où les gouttes sont emprisonnées en « sandwich » entre deux plans, l'un avec les électrodes à alimenter et l'autre avec les contre-électrodes reliées à la masse comme présenté à la Figure I.18 a.
- La configuration « ouverte » où les gouttes sont sur un substrat plan et se déplacent à l'air libre. On distingue trois types de contre-électrodes :
 - Tel un tramway, il est possible d'actionner des gouttes sous un réseau de microcaténaires relié ici à la masse (Figure I.18 b)
 - Les contre-électrodes peuvent être réalisées directement sur la couche isolante évitant ainsi un réseau de microcaténaires suspendu (Figure I.18 c).
 - Deux électrodes successives sont connectées à l'alimentation. Ici, le déplacement est légèrement différent dans le sens où la goutte ne s'arrête plus sur l'électrode alimentée mais entre celles connectées à l'alimentation (Figure I.18 d)

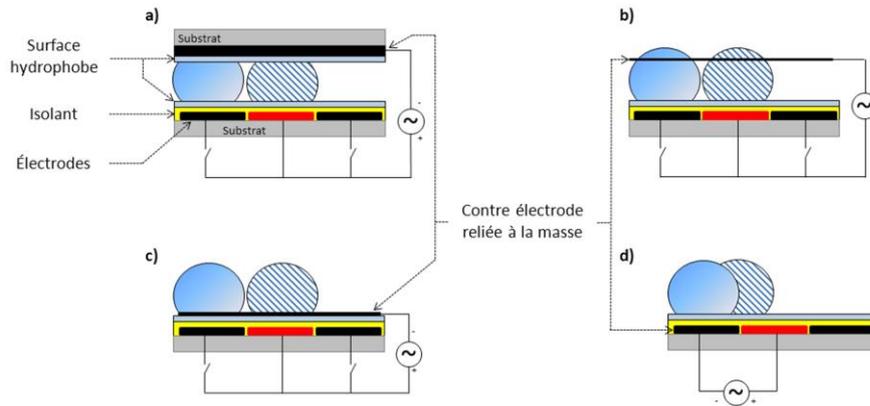


Figure I.18 : Les différentes configurations de la technique d'actionnement par électromouillage. Les électrodes sont systématiquement recouvertes d'une couche isolante et/ou d'une couche hydrophobe. Les gouttes de couleurs dégradées sont celles représentant la position initiale tandis que celles hachurées représentent la position après alimentation de l'électrode rouge. La configuration « fermée » emprisonne la goutte entre deux plans (a). (b), (c) et (d) représentent les différentes possibilités de la configuration « ouverte ». Les contre-électrodes sont reliées à la masse sous forme de microcaténaires (b) ou déposées en surface (c). Une dernière possibilité est de relier deux électrodes successives à la source d'alimentation permettant un déplacement des gouttes légèrement différent (d).

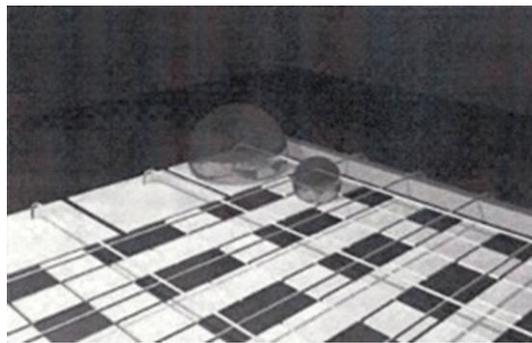


Figure I.17 : Photographie d'un dispositif d'actionnement de goutte par électromouillage sur isolant (EWOD). La masse est réalisée par des microcaténaires (CEA-LETI, Grenoble)

Un exemple de dispositif développé au CEA-LETI à Grenoble est présenté à la Figure I.17 sur lequel nous pouvons observer les microcaténaires. Ce dispositif permet de déplacer des gouttes d'eau de l'ordre du μL . Quelle que soit la fréquence comprise en 1 et 500Hz, la tension nécessaire au déplacement de la goutte est de $80V_{\text{eff}}$ ce qui correspond à l'estimation théorique donnée par l'équation suivante :

$$V_{\min} = \sqrt{\frac{4\gamma_{lv}d}{\epsilon_0\epsilon_r} (\cos\theta_a + \cos\theta_r)} \quad (1.8)$$

où V_{\min} est la tension minimum à appliquer pour déplacer la goutte et $\epsilon_r(\text{téflon}) = 1,9$ et $d=1\mu\text{m}$ dans ce cas précis. Cette équation est à utiliser avec précaution. En effet, une étude récente présente que la géométrie des électrodes influe sur la tension et la vitesse de déplacement des gouttes [122].

1.C.2.2.1.3. Fabrication

Comme nous venons de le voir sur la Figure I.18, les dispositifs standards d'électromouillage sur diélectrique comprennent quatre parties principales : le substrat, les électrodes, la couche isolante et la couche hydrophobe. Ces deux dernières sont parfois réalisées à l'aide d'un seul matériau si celui-ci a intrinsèquement les deux propriétés. Le choix du substrat est important car il détermine le processus de fabrication. Souvent, le verre et le silicium sont utilisés pour leur propriété chimique inerte et leur compatibilité avec les processus de fabrication des MEMS. Le verre permet des applications où la transparence est souhaitée tandis que le silicium offre la possibilité d'intégrer l'électronique de commande. Il apparaît une nouvelle tendance à propos de l'utilisation de substrat de circuit imprimé (PCB) dû à leur faible coût et la facilité de fabrication en grande série [123]. Les électrodes sont fabriquées en métal, typiquement en chrome, aluminium, or, cuivre ou à l'aide d'autres matériaux conducteurs comme l'oxyde d'indium-étain (ITO) qui a l'avantage d'être transparent. La couche isolante, sur les électrodes, peut être réalisée de différentes manières : par dépôt en phase vapeur pour le parylène, les fluoropolymères amorphes, le nitrure de silicium, par croissance thermique (l'oxyde de silicium), par spin coating (PDMS ou SU-8)... Enfin, le revêtement hydrophobe, typiquement un fluoropolymère comme le téflon, est utilisé pour réduire l'énergie de surface. Les techniques de fabrication en jeu sont celles issues de la microtechnologie. Plusieurs étapes de photolithographie et de gravures humides et sèches sont les techniques les plus utilisées pour la réalisation des dispositifs.

1.C.2.2.1.4. Actions fluidiques et applications

Au-delà du « simple » déplacement de gouttes par électromouillage sur diélectrique, néanmoins primordiale et indispensable pour mouvoir les échantillons vers les zones de réaction et d'analyse, de nombreux travaux ont permis de réaliser plusieurs fonctions basiques d'un laboratoire classique affirmant la capacité d'intégration de cette technique pour la réalisation de laboratoire sur puce (Figure I.19) :

- La dispense de gouttes : A partir d'un réservoir, il est possible de dispenser des gouttes dont le volume varie de moins de 3% pour des gouttes de 64nl [124]. Le volume dépend directement de la taille des électrodes.
- La coalescence de gouttes : Deux gouttes dirigées vers une même électrode coalescent pour former une unique goutte.
- La séparation de gouttes : A partir d'une goutte, il est possible de la séparer pour former deux gouttes de volumes plus faibles.
- Le mélange : En déplaçant la goutte sur plusieurs électrodes, un mélange homogène est obtenu rapidement. Le mélange interne peut aussi être effectué sans bouger la goutte et avec un signal alternatif appliqué à l'électrode [125] [126].

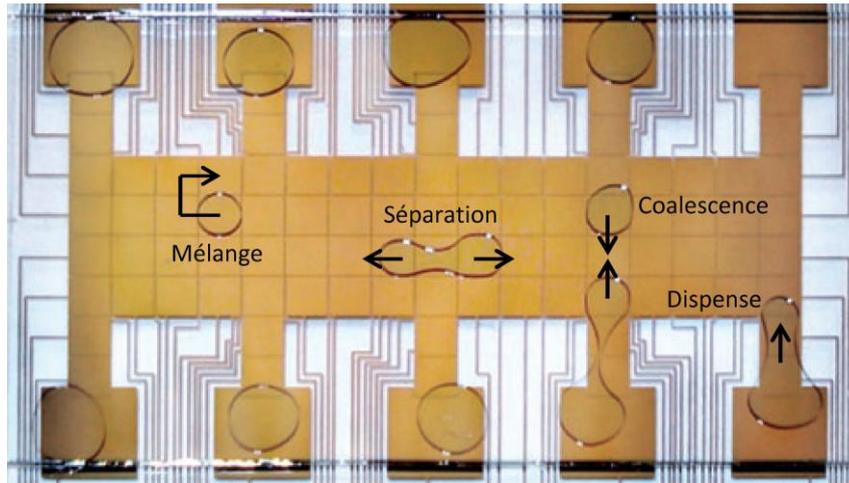


Figure 1.19 : Opérations fluidiques par électromouillage sur diélectrique : Dispense, coalescence, séparation et mélange [119]

Cette technique d'actionnement de gouttes est actuellement la plus utilisée dans les microsystèmes fluidiques ouverts. Il suffit d'observer le nombre de « review » concernées par l'électromouillage sur isolant [117] [118] [119] [120] [121] [127] [128] ainsi que différentes thèses récentes sur ce domaine [129] [130] [131]. L'exploitation des actions fluidiques permet la réalisation de la plupart des fonctions indispensables à l'intégration de tout un protocole biologique ou chimique sur une même puce [131] [133].

Ainsi, de nombreux protocoles complets ont été validés sur puce avec des résultats comparables à ceux obtenus par les systèmes conventionnels. On peut noter la réalisation d'une plateforme de duplication de brins d'ADN par réaction PCR [134], la détection de glucose dans des liquides physiologiques humains tel que l'urine, la salive et le plasma [135], la préparation d'échantillons pour l'analyse protéomique [136], la détection d'explosifs nitroaromatiques tel que 2,4,6-trinitrotoluène (TNT) [137], la détection d'insuline et l'interleukine 6 avec l'utilisation de billes magnétiques fonctionnalisées avec des anticorps [138]... On remarque donc les capacités de la technique EWOD à s'intégrer comme outil microfluidique pour le contrôle et le déplacement de microgoutte sur surface ouverte. Les applications résultantes sont nombreuses et les possibilités d'intégrations pour la réalisation de laboratoires sur puces sont abondantes.

Cependant, à l'heure actuelle, l'utilisation de cette technologie est limitée principalement en raison du processus de fabrication « complexe » par rapport à celui de la microfluidique en microcanal. Cette situation devrait changer avec le développement des techniques de production de masse. En résumé, cette technique en voie de maturation est en continuelle amélioration et va certainement contribuer de manière significative à des applications biologiques, chimiques et médicales [119].

I.C.2.2.2. La technique à base d'ondes élastiques de surface

Nous présenterons ici de manière succincte la génération des ondes élastiques de surface. Nous y reviendrons en détail dans la deuxième partie.

I.C.2.2.2.1. Principe de génération des ondes élastiques de surface

Les ondes élastiques de surface, ou ondes acoustiques de surface (SAW pour Surface Acoustic Wave), sont générées grâce à un matériau piézoélectrique choisi selon des critères bien définis tels que le coefficient de couplage électromécanique ou encore la vitesse de propagation des ondes élastiques dans ce matériau. Des électrodes métalliques dites interdigitées (ou IdT pour Interdigitated Transducers) sont réalisées à la surface du substrat piézoélectrique (Figure I.20) par les techniques de microélectronique classique telles que la photolithographie et la gravure humide.

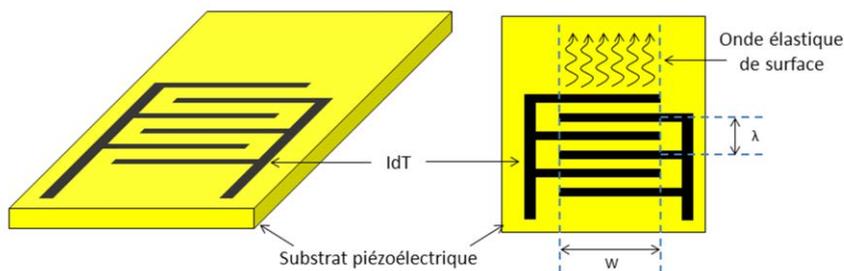


Figure I.20 : Principe de génération des ondes élastiques de surface

L'excitation de l'IdT avec un signal électrique sinusoïdal génère, par effet piézoélectrique inverse, une onde élastique qui se propage à la surface du matériau. L'énergie du signal électrique est transformée en énergie mécanique. La vitesse de propagation v de cette onde est fonction du matériau piézoélectrique choisi et de son orientation cristalline. La fréquence f_0 d'excitation est donnée par la relation suivante :

$$f_0 = \frac{v}{\lambda} \quad (I.9)$$

où v est exprimé en $m.s^{-1}$, λ est la longueur d'onde en m et f_0 en Hz. La vitesse de propagation de ces ondes varie de $1681m.s^{-1}$ pour le Germanate de bismuth [139] à plus de $11000 m.s^{-1}$ avec des structures en couches minces IdT/ZnO/Diamant/Silicium [140]. La longueur d'onde étant de l'ordre du micromètre jusqu'à une centaine de micromètres, la fréquence de fonctionnement de ces dispositifs varie de la dizaine de mégahertz à quelques gigahertz. Différents types d'ondes peuvent être générées comme des ondes de Love ou les ondes de Rayleigh. Ces dernières peuvent interagir avec les liquides grâce à leur vibration perpendiculaire à la surface du substrat et c'est là tout leur intérêt pour notre étude (Figure I.22 c). Elles possèdent deux composantes : une longitudinale parallèle au déplacement appelée onde P représentée Figure I.22 a) et une transversale, perpendiculaire au

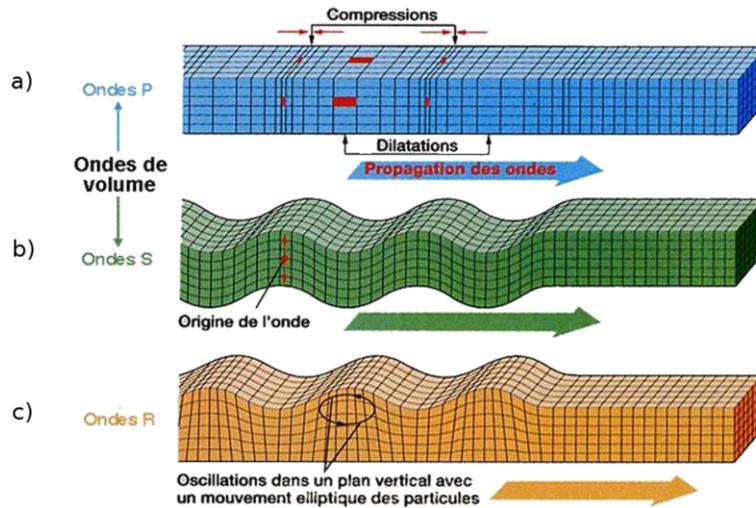


Figure I.22 : Représentation de différents types d'onde : Une onde longitudinale P (a), une onde transversale S (b) et une onde de Rayleigh (c)

déplacement, appelée onde S représentée Figure I.22 b). Seule la dernière interagit avec un liquide et induit des phénomènes à l'échelle micro ou macroscopique tels que le mélange et le déplacement de gouttes. Nous pouvons décrire les ondes de Rayleigh comme étant de petites vagues d'amplitude nanométrique qui vont interagir avec des gouttes de taille milli ou submillimétriques. Une photographie MEB (Microscopie Electronique à Balayage) nous montre deux trains d'impulsion d'ondes de Rayleigh sur la Figure I.21 issue de [141]. On remarque très bien la largeur du faisceau des ondes élastiques correspondant à la largeur de l'IdT.

En fonction de l'énergie que véhiculent les ondes de Rayleigh, différents phénomènes se produisent à l'échelle de la goutte. Il paraît pourtant invraisemblable de déplacer une goutte de taille millimétrique avec une vague de taille nanométrique. A notre échelle, cela correspondrait à un tremblement de terre d'amplitude millimétrique pouvant induire le déplacement d'une goutte d'un diamètre de l'ordre du kilomètre !

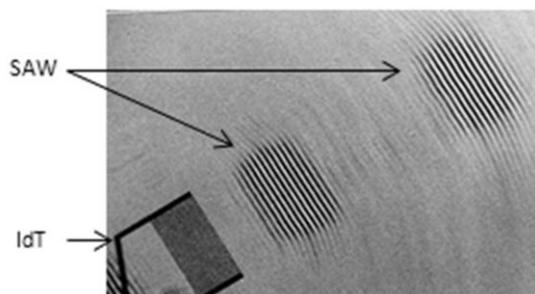


Figure I.21 : Photographie MEB d'un transducteur interdigité (IdT) et de deux trains d'impulsions d'ondes élastiques de surface (SAW) de type Rayleigh [140]

1.C.2.2.2.2. Couplage des ondes de Rayleigh avec un liquide

En choisissant judicieusement le substrat piézoélectrique, l'onde de Rayleigh peut se propager sans atténuation notable à l'interface solide/air. Cependant, une fois en contact avec un liquide, l'onde élastique est fortement atténuée à l'interface solide/liquide après un faible parcours équivalent à quelques longueurs d'onde, dû aux frottements visqueux avec le liquide. En général, dans ce type de système, les longueurs d'onde sont comprises entre la dizaine et quelques centaines de micromètres ce qui signifie que l'onde est totalement atténuée après un trajet inférieur au millimètre. L'énergie véhiculée par l'onde est transmise au liquide sous forme d'ondes longitudinales et suivant un angle θ_r , appelé angle de Rayleigh, défini par l'équation suivante et représentée à la Figure I.23:

$$\theta_r = \sin^{-1} \left(\frac{v_l}{v_s} \right) \quad (I.10)$$

avec v_l la vitesse de propagation de l'onde dans le liquide et v_s celle dans le substrat en $m.s^{-1}$. Plusieurs effets sont observés en fonction de l'énergie des ondes élastiques de surface :

- A faible énergie, un mélange interne (Figure I.23) est créé dans la goutte pouvant atteindre des vitesses de l'ordre du $cm.s^{-1}$ [142] [143].
- Si la surface du substrat est traitée de manière à la rendre hydrophobe, il est possible d'actionner la goutte dans le sens de propagation des ondes élastiques de surface avec des vitesses de l'ordre du $cm.s^{-1}$ [144]
- A forte énergie, la microgoutte s'échauffe jusqu'à des températures supérieures à $100^\circ C$ en fonction de la viscosité du liquide [145].
- A très forte énergie, la goutte peut être « atomisée » de manière à créer un jet de très fines particules du liquide [146].

L'énergie des ondes élastiques, telle que nous en « parlons », peut être modifiée en faisant varier la puissance électrique appliquée à l'électrode interdigitée. Les différents phénomènes sont alors observables en modulant la puissance électrique soumise à l'IdT. De ce fait, ces quatre actions fluidiques permettent d'envisager l'élaboration de laboratoires sur puces dédiés à la biologie ou à la chimie.

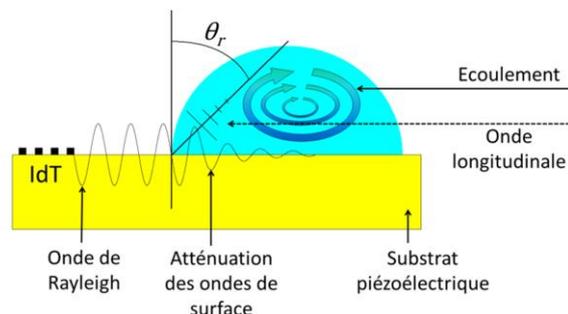


Figure I.23 : Interaction entre une onde élastique de type Rayleigh et une goutte de liquide

I.C.2.2.2.3. Applications

A partir des actions fluidiques citées précédemment, de nombreux dispositifs pour différentes applications ont ainsi vu le jour. Avec une onde élastique de faible énergie, nous avons vu qu'un mélange interne se crée. Ce mélange s'effectue très rapidement, en moins d'une seconde, et peut être utile pour mélanger des réactifs et améliorer le rendement de réactions chimiques et biologiques [147]. Par ailleurs, en décalant la goutte sur une moitié du faisceau des ondes élastiques, il est possible de concentrer des particules avec des temps comparables au mélange de réactif [148] [149]. La concentration de particules est une procédure importante pour les systèmes microfluidiques, par exemple, pour la séparation de globules rouges et du plasma. Enfin, cet effet de mélange a aussi permis la réalisation de systèmes SAW intégrés à d'autres techniques de mise en mouvement de fluide. Avec les systèmes microfluidiques continus, deux fluides dans une jonction « Y » se joignent et s'écoulent de manière laminaire. Le mélange est alors diffusif et il faut de grandes longueurs de canaux pour mélanger les deux fluides. En générant des ondes élastiques de surface de manière transversale à l'écoulement des liquides dans le microcanal, les deux fluides sont mélangés rapidement de façon homogène avec une grande efficacité [150] [151]. Les mélangeurs de gouttelettes actifs basés sur des dispositifs SAW offrent une solution très rapide et efficace avec une vitesse de mélange qui peut être contrôlée simplement en ajustant la puissance appliquée à l'IdT.

L'échauffement de goutte en tant que tel a été étudié dans les travaux de thèse de D. Beyssen [151] ainsi que dans les publications de Kondoh *et al.* [145] et de Ito *et al.* [153]. Une première application est apparue récemment avec la publication d'un système type bain-marie [154] [154]. Un réceptacle en PDMS contenant du glycérol est chauffé par irradiation d'une onde élastique de surface. Un conteneur en métal recouvert de PDMS est inséré dans le réceptacle chauffé garantissant un transfert thermique et assurant une température supérieure à celle de fusion de la paraffine (58-60°C). Un morceau solide de paraffine est ainsi dissout dans une goutte de glycérol en moins de trois minutes. L'échauffement est modifié en ajustant la puissance électrique injectée à l'électrode, simplifiant le contrôle de la température.

L'atomisation est une application très importante pour de nombreux domaines tel que l'injection de combustible, les pulvérisateurs agricoles, l'impression à jet d'encre, la spectrométrie de masse, l'injection de médicaments [156] [157] [158]... Il existe différentes méthodes d'atomisation : hydrodynamique [159], par électropulvérisation [160], ultrasonique [161]... Comparée aux précédentes techniques, celle basée sur l'interaction SAW/liquide offre plusieurs avantages : faibles dimensions du dispositif, réponse de l'ordre de la milliseconde, faible coût et consommation d'énergie réduite [162] [163] [164]. Ainsi, plusieurs dispositifs à base d'ondes élastiques de surface ont été développés dans différents domaines et sont toujours étudiés aujourd'hui : l'extraction de liquide, de cellules et de protéines [146], l'administration de médicaments par inhalation pulmonaire [163], la spectroscopie de masse [165]...

Enfin, le déplacement de goutte est une action fluidique indispensable pour la réalisation d'un système microfluidique ouvert complet. Ainsi, de nombreuses études sont apparues traitant de cet aspect fondamental [67] [143] [144] [151]. Les vitesses de déplacement des gouttes sont de l'ordre du cm.s^{-1} , dépendant principalement de l'énergie de l'onde et du type de surface, hydrophile/hydrophobe/super-hydrophobe, entre la goutte et le substrat piézoélectrique.

1.C.2.2.2.4. Intégration et adaptation des dispositifs à ondes élastiques de surface

Au-delà des quatre actions fluidiques simples et efficaces dues à l'interaction des ondes élastiques de surface avec les liquides, de nombreux systèmes intégrant réactions chimiques et/ou biologiques et analyses ont découlé de ces interactions. La grande force des systèmes à ondes élastiques réside dans leur capacité à s'adapter et à s'intégrer avec les autres techniques microfluidiques. Notons par exemple le tri de cellules en flux continu [166]. Celles-ci s'écoulent dans un flux continu et sont orientées selon quatre chemins en fonction de l'activation et de l'énergie des ondes élastiques de surface. La technique SAW s'intègre aussi avec des systèmes diphasiques. Les ondes élastiques de Rayleigh permettent la régularisation de la formation de gouttelettes dans un système à jonction en T [167]. Cela permet un contrôle de la taille de la goutte en temps réel sans modifier les débits ou les dimensions de microcanaux. Des dispositifs combinant les techniques SAW et EWOD ont aussi vu le jour [168]. Les R-SAW (Rayleigh – SAW) aident à diviser les gouttelettes lorsque la force exercée par la technique EWOD n'est pas suffisante. A l'inverse, cette dernière peut aider les SAW lors de la concentration de particules, du mélange et de l'atomisation.

Soulignons aussi les grandes possibilités offertes par les techniques à base d'ondes élastiques de surface pour la réalisation de capteurs biologiques et chimiques. En effet, l'excitation et la propagation d'un autre type d'onde, celle de Love, ne se couple pas avec les fluides. Ainsi, de nombreux capteurs sont développés présentant plusieurs avantages. La miniaturisation du dispositif, la réduction de la consommation d'énergie et l'intégration des circuits électroniques de commande et de détection. Pour des applications biologiques, les biocapteurs sont intégrés dans un système microfluidique et la zone de détection est revêtue d'une couche bio-spécifique au composé à détecter. Lorsque ce dernier interagit avec la couche bio-spécifique, la variation de masse et de viscosité de la couche peut être détectée par le changement des propriétés des ondes élastiques de surface telles que la vitesse, l'atténuation, la fréquence de résonance et le temps de retard [169] [170] [171].

1.C.2.2.3. Conclusion partielle

Les dispositifs à base d'ondes élastiques de surface présentent de nombreux intérêts tant au niveau de l'interaction onde/liquide que de la détection d'espèces chimiques et biologiques ou encore de l'intégration avec d'autres techniques microfluidiques. L'interaction entre les R-SAW et un liquide permet la réalisation de plusieurs fonctions fluidiques

fondamentales en vue de la conception et réalisation de laboratoires sur puce. Les techniques de détection et les réactions biologiques et chimiques affirment la tendance à intégrer des opérations de plus en plus complexes sur une même puce. De plus, les aptitudes de ces dispositifs à s'intégrer à d'autres systèmes fluidiques leur assurent un avenir pérenne.

I.D. La physique mise en jeu

Dans cette partie, il ne s'agit pas de démontrer les équations physiques régissant la microfluidique mais de présenter leurs fondements. Le lecteur pourra se référer au papier et à l'ouvrage de H. Bruus [172] [173] qui établit et explique, en détail, les équations régissant la microfluidique ou encore à l'ouvrage de A.J. Majda et A.L. Bertozzi [174].

I.D.1. Un petit peu d'histoire

Comme vu auparavant, la microfluidique est une branche récente de la mécanique des fluides. Cette dernière est l'étude du comportement des fluides et a été introduite il y a fort longtemps, avec Archimède (III^e siècle avant J-C), qui découvre que tout corps plongé dans un liquide (ou un gaz) est soumis à une poussée qui s'exerce du bas vers le haut et qui est égale au poids du volume de liquide déplacé. Après une longue période, c'est au XV^e siècle, avec Leonardo da Vinci, que reprend l'étude de la mécanique des fluides. En effet, il propose des descriptions d'écoulements de jets, de tourbillons et d'ondes de surface et formule le principe de conservation de la masse.

Au XVI^e siècle, l'introduction d'outils algébriques destinés à rendre compte de réalités physiques permet, par exemple, à Galilée, d'étudier la mécanique céleste avec notamment le mouvement de la Lune et des planètes. En 1687, Isaac Newton publie dans *Principia mathematica* les fondements de la mécanique classique. Par ailleurs, Newton pose le principe de la « loi fondamentale de la dynamique » :

$$\sum \vec{f} = m\vec{a} \quad (I.11)$$

La somme des forces \vec{f} agissant sur un solide est égale au produit de sa masse m par son accélération \vec{a} .

En 1738, Daniel Bernoulli étudie les fluides non visqueux en fondant son analyse sur la conservation de l'énergie. Parallèlement, une nouvelle théorie mathématique est en train de naître qui va révolutionner la compréhension mathématique du mouvement des corps : le calcul différentiel. Peu de temps après, en 1749, Jean d'Alembert introduit de nouvelles notions fondamentales dans l'étude de la dynamique des fluides : les dérivées partielles, les champs de vecteurs et la pression interne d'un fluide. Euler profite des travaux de d'Alembert et introduit la notion de gradient de pression [175].

I.D.2. Equations d'Euler

Quelques années plus tard, en 1755, Euler publie un traité dans lequel apparaissent pour la première fois les équations aux dérivées partielles décrivant les fluides parfaits incompressibles [176].

I.D.2.1. Equation de continuité et conservation de la masse

Un principe fondamental de la mécanique des milieux continus est la conservation de la masse au cours d'un changement d'état d'un fluide newtonien traduit par l'équation de continuité :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (I.12)$$

ou ρ est la masse volumique, \vec{v} le champ de vecteur de vitesse, t le temps et $\vec{\nabla}$ est l'opérateur différentiel. Un fluide newtonien est un fluide qui s'écoule indépendamment des forces extérieures qui agissent sur lui. L'eau, les solutions aqueuses, la plupart des solvants, l'air et de nombreux gaz sont des exemples de fluides newtoniens. Dans toute cette étude, les fluides utilisés sont newtoniens.

Par ailleurs, les nombres de Mach, valeurs sans dimension nous informant de la compressibilité des fluides, des liquides dans cette étude sont faibles : les fluides apparaissent alors incompressibles. En réalité, tous les fluides sont compressibles. Seulement, certains le sont plus que d'autres. Par exemple, en bouchant la sortie d'une pompe à vélo, on peut constater qu'il est possible de pousser le piston et comprimer l'air contenu à l'intérieur. En revanche, en remplaçant le gaz par un liquide, de l'eau par exemple, il est très difficile de pousser le piston.

Dans cette étude, les liquides sont newtoniens et les nombres de Mach correspondant sont très faibles notamment en microfluidique. Les liquides apparaissent alors incompressibles et les masses volumiques constantes dans le temps et l'espace :

$$\rho = cste \quad \Rightarrow \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (I.13)$$

En réduisant l'équation (I.12), il vient :

$$\vec{\nabla} \cdot (\rho \cdot \vec{v}) = 0 \quad (I.14)$$

Sachant que la masse volumique est constante et non nulle, l'équation de continuité devient alors l'équation dite d'incompressibilité:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (I.15)$$

ce qui signifie que la divergence du champ de vitesse est nulle partout. Physiquement, cela revient à dire que le taux de dilatation du volume local est égal à zéro. Il est souvent utile, généralement une bonne approximation en microfluidique, de considérer les liquides incompressibles pour ainsi faciliter les calculs [172].

I.D.2.2. Conservation de la quantité de mouvement

Euler propose aussi une première description de la conservation de la quantité de mouvement pour des fluides incompressibles et non visqueux. Ce principe découle directement de la deuxième loi de Newton. Considérons un fluide incompressible contenu dans un volume Ω . Notons respectivement $\vec{v}(m; t)$ et $\vec{p}(m; t)$ le champ de vitesse et le champ de pression du fluide au point m à l'instant t et ρ la masse volumique. On s'intéresse à la dynamique d'une particule de position $x(t)$ à l'instant t . Sa vitesse $\vec{u}(t)$ à l'instant t est alors :

$$\vec{u}(t) = \vec{v}(x(t), t) \quad (I.16)$$

Son accélération est de la forme :

$$\frac{d\vec{u}}{dt} = \frac{d\vec{v}}{dt} = \left(\frac{dx}{dt} \cdot \vec{\nabla} \right) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \quad (I.17)$$

Selon le principe fondamental de la dynamique de Newton, il vient :

$$\rho \frac{d\vec{v}}{dt} = -\vec{\nabla} \vec{p} + \rho \vec{g} \quad (I.18)$$

D'où, en remplaçant l'expression $\frac{d\vec{v}}{dt}$:

$$\rho \left[\left(\frac{d\vec{x}}{dt} \cdot \vec{\nabla} \right) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right] = -\vec{\nabla} \vec{p} + \rho \vec{g} \quad (I.19)$$

ou encore :

$$\rho \left[(\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right] = -\vec{\nabla} \vec{p} + \rho \vec{g} \quad (I.20)$$

En présence d'un champ de force supplémentaire \vec{f} s'exerçant sur le fluide, un troisième membre apparaît dans l'équation (I.20) et devient :

$$\rho \left[(\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right] = -\vec{\nabla} \vec{p} + \rho \vec{g} + \vec{f} \quad (I.21)$$

Malgré les apparences, cette équation n'est rien d'autre que la relation fondamentale de la dynamique de Newton où nous avons supposé que la masse du fluide, qui est plutôt ici sa masse volumique ρ , est constante (I.13), la partie gauche de l'égalité représentant l'accélération et $-\vec{\nabla} \vec{p} + \rho \vec{g} + \vec{f}$ les forces de pression, de pesanteur et le champ de force respectivement.

I.D.2.3. Le paradoxe de d'Alembert

Cependant, l'équation d'Euler est valable pour des fluides considérés non visqueux. Or, cette hypothèse est en réalité fautive. On peut considérer un fluide non visqueux pour certains calculs ou approximations, mais tout fluide possède une certaine viscosité. C'est en 1752 que d'Alembert remarque qu'un objet, plongé dans un fluide correspondant aux conditions précédentes (incompressible et non visqueux), ne subit aucune résistance lors de son déplacement, ce qui est contraire aux attentes. Afin de comprendre en quoi un objet en mouvement dans un fluide visqueux subit en général une force de résistance, il faut prendre en compte les phénomènes de frottement interne au fluide au niveau moléculaire.

I.D.3. Equation de Navier-Stokes

Lors de l'évolution d'un objet dans un fluide visqueux, ce dernier va dissiper de l'énergie sous forme de chaleur par le frottement simple d'une couche de fluide sur l'autre. Inclure un tel phénomène dans les équations d'Euler était difficile puisque celles-ci formulent le mouvement macroscopique du fluide alors que cette dissipation d'énergie a lieu à un niveau microscopique. Ainsi, Navier, suivi de Stokes, propose en 1845 d'ajouter un terme à l'équation (I.20) et ils formulent le modèle suivant afin de décrire l'évolution d'un fluide visqueux :

$$\rho \left[(\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right] = -\vec{\nabla} p + \mu \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \rho \vec{g} \quad (I.22)$$

où μ représente la viscosité dynamique en Pa.s. N'oublions pas que cette équation est valable uniquement pour des fluides newtoniens incompressibles permettant de faire l'approximation de l'équation de continuité (I.15). Dans le cas de fluides compressibles et newtoniens, on obtient l'équation suivante :

$$\rho \left[(\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right] = -\vec{\nabla} p + \mu \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \left(\mu' + \frac{\mu}{3} \right) \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \rho \vec{g} \quad (I.23)$$

avec μ' la viscosité volumique du fluide. Ici, l'approximation de l'équation d'incompressibilité (I.15) n'est plus à prendre en compte. Nous nous rattacherons donc à l'équation de la continuité (I.12) plus complexe à résoudre. Dans les systèmes microfluidiques, il est d'usage de négliger la gravité dû aux petites échelles des fluides [177]. Le dernier terme des équations (I.22) et (I.23) peut donc être négligé.

I.D.4. Les nombres adimensionnels

En microfluidique et mécanique des fluides, il existe une multitude de nombres adimensionnels permettant de caractériser les mécanismes mis en jeu. Nous ne les citerons pas tous, bien évidemment, mais nous allons nous intéresser à ceux se rapprochant de notre étude.

I.D.4.1. Le nombre de Reynolds

Le nombre de Reynolds permet de caractériser le régime d'écoulement dans le système étudié. Ce nombre est calculé à partir de l'équation suivante :

$$Re = \frac{U.l}{\nu} = \frac{\rho.U.l}{\mu} = \frac{\text{forces inertielles}}{\text{forces de viscosité}} \quad (I.24)$$

où U est la vitesse caractéristique de l'écoulement en m.s^{-1} , l la longueur caractéristique du système en m et ν la viscosité cinématique en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$. Il existe trois types d'écoulement : laminaire, transitoire et turbulent. Il est d'usage de dire qu'un nombre de Reynolds inférieur à 2000 induit un écoulement laminaire, entre 2000 et 3000 un écoulement transitoire et si le nombre est supérieur à 3000, l'écoulement est turbulent. Avec les systèmes microfluidiques à base d'onde élastiques de surface, que nous utiliserons dans cette étude, la vitesse caractéristique de l'écoulement au sein de gouttes est de l'ordre du cm.s^{-1} , la longueur caractéristique de la goutte est de l'ordre du mm et la viscosité cinématique dépend du fluide. Pour l'eau et le glycérol à 20°C, elles sont respectivement $1,007.10^{-6}\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ et $1,12.10^{-3}\text{m}^2.\text{s}^{-1}$. Les nombres de Reynolds sont respectivement 9,93 et $8,9.10^{-3}$ ce qui nous indique que l'écoulement au sein des fluides sera alors laminaire.

I.D.4.2. Le nombre de Mach

Le nombre de Mach, noté M_a , exprime le rapport de la vitesse locale d'un fluide par rapport à la vitesse du son dans ce même fluide :

$$M_a = \frac{U}{a} \quad (I.25)$$

avec U la vitesse caractéristique du fluide et a la vitesse de propagation du son dans ce même fluide. Dans cette étude, les vitesses d'écoulement sont de l'ordre du cm.s^{-1} et la vitesse de propagation du son dans l'eau est 340m.s^{-1} . Le nombre de Mach résultant est 3.10^{-5} . En général, on considère qu'un nombre de Mach inférieur à 0,3 nous indique que le fluide est incompressible. Dans beaucoup de cas, particulièrement en microfluidique et dans tous ces travaux, la vitesse d'écoulement est très inférieure à la vitesse de propagation du son dans les liquides. Les nombres de Mach sont faibles et les liquides peuvent être considérés incompressibles. Ainsi, dans certains cas précis, nous pouvons considérer l'approximation de l'équation de continuité (I.12).

I.E. Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons introduit la microfluidique et les différentes approches afférentes. Dans un premier temps, nous avons présenté l'histoire et les premières applications de la microfluidique, à partir de la fin des années 1960, avant de montrer que le développement rapide de cette discipline résulte de plusieurs antécédents : la microélectronique, la biologie moléculaire, l'analyse moléculaire et la biodéfense. C'est à partir des années 1990, avec l'apparition des concepts de μ TAS et de laboratoires sur puces, que la microfluidique connaît une forte croissance. Depuis, de nombreuses études ont été réalisées et des systèmes microfluidiques de toutes sortes sont développés, intégrant de plus en plus de réactions et d'analyses biologiques et chimiques.

Nous avons ensuite exposé les différentes approches microfluidiques. La microfluidique continue repose sur le transport de liquide en microcanaux tandis que la microfluidique discrète manipule des liquides sous forme de gouttes. Les deux techniques, se développant en parallèle, sont parfois associées pour former des laboratoires sur puce tirant partie des avantages de chacune d'entre elles. Nous avons vu leur principe, les différentes possibilités de mise en mouvement des fluides, les techniques de fabrications et quelques applications de chaque approche.

Pour finir, nous avons présenté la physique mise en jeu dans les systèmes microfluidiques. Les différentes équations régissant ce domaine ont été énoncées chronologiquement avant de détailler deux nombres adimensionnels décrivant le type d'écoulement et l'incompressibilité des fluides avec les systèmes que nous utiliserons.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter le principe des dispositifs à ondes élastiques de surface et leurs premières applications telles que dans le domaine de la télécommunication. Nous introduirons ensuite les interactions possibles entre les ondes élastiques de surface et des microgouttes dans l'objectif de la réalisation de laboratoires sur puce. Nous nous intéresserons principalement aux ondes élastiques de Rayleigh qui, une fois en contact avec un liquide, induisent une force à la base de plusieurs phénomènes tels que l'« acoustic streaming » ou le déplacement de goutte.

Bibliographie

- [1] A. Manz, D. Harrison, E. Verpoorte, J. Fettinger, A. Paulus, H. Lüdi et H. Widmer, «Planar chips technology for miniaturization and integration of separation techniques into monitoring systems: Capillary electrophoresis on a chip», *Journal of Chromatography A*, vol. 593, pp. 253-258, 1992.
- [2] «Chemical Abstracts Service», American Chemical Society, <https://www.cas.org/>. [Accès en 2010].
- [3] I. Lee, G. Yoon, J. Park, S. Seok, K. Chun et K. Lee, «Development and analysis of the vertical capacitive accelerometer», *Sensors and Actuators A*, vol. 119, pp. 8-18, 2005.
- [4] P. Tabeling, *Introduction à la microfluidique*, Editions Belin, 2003.
- [5] S. Terry, Thèse de doctorat de l'université de Stanford, 1975.
- [6] S. Terry, J. Jerman et J. Angell, «A gas chromatographic air analyzer fabricated on a silicon wafer», *IEEE Trans. Electron*, vol. 26, pp. 1880 - 1886, 1979.
- [7] D. Reyes, D. Iossifidis, P. Auroux et A. Manz, «Micro Total Analysis Systems. 1. Introduction, Theory, and Technology», *Anal. Chem.*, vol. 74, pp. 2623-2636, 2002.
- [8] H. Van Lintel, F. Van De Pol et S. Bouwstra, «A piezoelectric micropump based on micromachining of silicon», *Sensors and Actuators*, vol. 15, pp. 153 - 167, 1988.
- [9] M. Esashi, S. Shoji et A. Nakano, «Normally closed microvalve and micropump fabricated on a silicon wafer», *Sensors and Actuators*, vol. 20, p. 163–169, 1989.
- [10] F. Van De Pol, D. Wonnink, M. Elwenspoek et J. Fluitman, «A thermo-pneumatic actuation principle for a microminiature pump and other micromechanical devices», *Sensors and Actuators*, vol. 17, pp. 139-143, 1989.
- [11] J. Smits, «Piezoelectric micropump with three valves working peristaltically», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 21, p. 203–206, 1990.
- [12] S. Shoji, S. Nakagawa et M. Esashi, «Micropump and sample-injector for integrated chemical analyzing systems», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 21, pp. 189-192, 1990.
- [13] F. Van De Pol, F. Van Lintel, M. Elwenspoek et J. Fluitman, «A thermopneumatic micropump based on micro-engineering techniques», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 21, pp. 198-202, 1990.
- [14] M. Esashi, «Integrated micro flow control systems», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 21, pp. 161-167, 1990.
- [15] S. Shoji, M. Esashi et T. Matsuo, «Prototype miniature blood gas analyser fabricated on a silicon wafer», *Sensors and Actuators*, vol. 14, pp. 101-107, 1988.
- [16] A. D'Amico, A. Palma et E. Verona, «Surface acoustic wave hydrogen sensor», *Sensors and Actuators*, vol. 3, pp. 31-39, 1982-1983.
- [17] A. Bryant, M. Poirier, G. Riley, D. Lee et J. Vetelino, «Gas detection using surface acoustic wave delay lines», *Sensors and Actuators*, vol. 4, p. 105–111, 1983.
- [18] A. J. Ricco, S. J. Martin et T. E. Zipperian, «Surface acoustic wave gas sensor based on film conductivity changes», *Sensors and Actuators*, vol. 8, pp. 319-333, 1985.

- [19] M. S. Nieuwenhuizen et A. J. Nederlof, «Preliminary results with a silicon-based surface acoustic wave chemical sensor for NO₂», *Sensors and Actuators*, vol. 19, pp. 385-392, 1989.
- [20] B. Van der Schoot et P. Bergveld, «An ISFET-based microlitre titrator: integration of a chemical sensor—actuator system», *Sensors and Actuators*, vol. 8, pp. 11-22, 1985.
- [21] G. M. Whitesides, «The origins and the future of microfluidics», *Nature*, vol. 442, pp. 368-373, 2006.
- [22] A. Manz, Y. Miyahara, J. Miura, Y. Watanabe, H. Miyagi et K. Sato, «Design of an open-tubular column liquid chromatograph using silicon chip technology», *Sensors and Actuators B*, vol. 1, pp. 249-255, 1990.
- [23] A. Manz, N. Graber et H. M. Widmer, «Miniaturized total chemical analysis systems: A novel concept for chemical sensing», *Sensors and Actuators B*, vol. 1, p. 244–248, 1990.
- [24] J. Evans, D. Liepmann et A. P. Pisano, «Planar laminar mixer», *MEMS 97*, pp. 96-101, 1997.
- [25] J. B. Knight, A. Vishwanath, J. P. Brody et R. H. Austin, «Hydrodynamic Focusing on a Silicon Chip: Mixing Nanolitres in Microseconds», *Physical review letters*, vol. 80, pp. 3863-3866, 1998.
- [26] A. Manz, D. J. Harrison, E. M. J. Verpoorte, J. C. Fettinger, A. Paulus, H. Ludi et H. M. Widmer, «Planar chips technology for miniaturization and integration of separation techniques into monitoring systems:: Capillary electrophoresis on a chip», *Journal of Chromatography A*, vol. 593, pp. 253-258, 1992.
- [27] S. Jacobson, R. Hergenröder, L. B. Koutny, R. J. Warmack et J. Michael Ramsey, «Effects of Injection Schemes and Column Geometry on the Performance of Microchip Electrophoresis Devices», *Analytical Chemistry*, vol. 66, pp. 1107-1113, 1994.
- [28] B. H. Weigl et P. Yager, «Microfluidic Diffusion-Based Separation and Detection», *Science*, vol. 283, pp. 346-347, 1999.
- [29] P. Wilding, M. A. Shoffner et L. J. Kricka, «PCR in a silicon microstructure», *Clinical Chemistry*, vol. 40, pp. 1815-1818, 1994.
- [30] R. P. Oda, M. A. Strausbauch, H. A. F. R. N. Borson, S. R. Jurens, J. Craighead, P. J. Wettstein, B. Eckloff, B. Kline et J. P. Landers, «Infrared-Mediated Thermocycling for Ultrafast Polymerase Chain Reaction Amplification of DNA», *Analytical Chemistry*, vol. 70, pp. 4361-4368, 1998.
- [31] J. C. T. Eijkel, A. Prak, S. Cowen, D. H. Craston et A. Manz, «Micromachined heated chemical reactor for pre-column derivatisation», *Journal of Chromatography*, vol. 815, pp. 265-271, 1998.
- [32] D. J. Harrison, A. Manz et P. G. Glavina, «Electroosmotic pumping within a chemical sensor system integrated on silicon», *Transducers 91*, pp. 792-795, 1991.
- [33] X. M. Zhao, Y. Xia et G. M. Whitesides, «Soft lithographic methods for nano-fabrication», *Journal of Materials Chemistry*, vol. 7, p. 1069–1074, 1997.
- [34] Y. Xia et G. M. Whitesides, «Soft Lithography», *Angewandte-chemie-international-edition*, vol. 37, pp. 550-575, 1998.
- [35] S. R. Quake et A. Scherer, «From micro to nanofabrication with soft materials», *Science*, vol. 290, pp. 1536-1540, 2000.
- [36] J. Choi, Y. Piao et T. Seo, «Fabrication of various cross-sectional shaped polymer microchannels by a simple PDMS mold based stamping method», *Biochip Journal*, vol. 6, pp. 240-246, 2012.

- [37] M. Vlachopoulou, G. Kokkoris, C. Cardinaud, E. Gogolides et A. Tserepi, «Plasma etching of poly(dimethylsiloxane): Roughness formation, mechanism, control, and application in the fabrication of microfluidic structures», *Plasma Processes and Polymers*, vol. 10, pp. 29-40, 2013.
- [38] S. Tanzi, P. Ostergaard, M. Matteucci, T. Christiansen, J. Cech, R. Marie et R. Taboryski, «Fabrication of combined-scale nano- and microfluidic polymer systems using a multilevel dry etching, electroplating and molding process», *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 22, p. 115008, 2012.
- [39] B. Xu, X. Yan, J. Zhang, J. Xu et H. Chen, «Glass etching to bridge micro- and nanofluidics», *Lab on a Chip*, vol. 12, pp. 381-386, 2012.
- [40] I. Papautsky, J. Brazzle, H. Swerdlow et A. Frazier, «A low-temperature IC-compatible process for fabricating surface micromachined metallic microchannels», *Journal of microelectromechanical systems*, vol. 7, pp. 267-273, 1998.
- [41] G. Vladislavljević, I. Kobayashi et M. Nakajima, «Production of uniform droplets using membrane, microchannel and microfluidic emulsification devices», *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 13, pp. 151-178, 2012.
- [42] M. Song, L. Y. T. Zhu, L. Du, M. Wang et C. Liu, «Injection molding of plastic microfluidic chip», *Nanotechnology and Precision Engineering*, vol. 9, pp. 329-334, 2011.
- [43] H. Lorenz, M. Despont, N. Fahrni, N. LaBianca, P. Renaud et P. Vettiger, «A low-cost negative resist for MEMS», *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 7, pp. 121-124, 1997.
- [44] J. Zhang, K. Tan et H. Gong, «Characterization of the polymerisation of SU-8 photoresist and its applications in micro-electro-mechanical systems (MEMS)», *Polymer Testing*, vol. 20, pp. 693-701, 2001.
- [45] «SU-8 Cantilevers for Bio/chemical Sensing; Fabrication, Characterisation and Development of Novel Read-out Methods», *Sensors*, vol. 8, pp. 1595-1612, 2008.
- [46] M. Gersborg-Hansen, L. Thamdrup, A. Mironov et A. Kristensen, «Combined electron beam and UV lithography in SU-8», *Microelectronic Engineering*, vol. 84, pp. 1058-1061, 2007.
- [47] A. Altuna, E. Bellistri, E. Cid, P. Aivar, B. Gal, J. Berganzo, G. Gabriel, A. Guimerà, R. Villa, L. Fernández et L. Menendez De La Prida, «SU-8 based microprobes for simultaneous neural depth recording and drug delivery in the brain», *Lab on a Chip*, vol. 13, pp. 1422-1430, 2013.
- [48] I. El Gmati, P. Calmon, A. Boukabache, P. Pons, H. Boussetta, M. Kallala et K. Besbes, «RF MEMS continuous reversible variable inductor based on a microfluidic network», *Microsystem Technologies*, pp. 1-7, 2013.
- [49] F. Ouali, G. McHale, H. Javed, C. Trabi, N. Shirtcliffe et M. Newton, «Wetting considerations in capillary rise and imbibition in closed square tubes and open rectangular cross-section channels», *Microfluidics and Nanofluidics*, pp. 1-8, 2013.
- [50] M. Bélanger et Y. Marois, «Hemocompatibility, biocompatibility, inflammatory and in vivo studies of primary reference materials low-density polyethylene and polydimethylsiloxane: A review», *Journal of Biomedical Materials Research*, vol. 58, p. 467-477, 2001.
- [51] F. Hua, Y. Sun, A. Gaur, M. Meitl, L. Bilhaut, L. Rotkina, J. Wang, P. Geil, M. Shim et J. Rogers, «Polymer Imprint Lithography with Molecular-Scale Resolution», *Nanoletters*, vol. 4, pp. 2467-2471, 2004.
- [52] T. Franke, A. Abate, D. Weitz et A. Wixforth, «Surface acoustic wave (SAW) directed droplet flow in microfluidics for PDMS devices», *Lab on a Chip*, vol. 9, p. 2625-2627,

2009.

- [53] «Le PDMS et la microfluidique», elveflow, 18 Avril 2013. [En ligne]. Available: <http://www.elveflow.com/fr/le-pdms-poly-di-methyl-siloxane-et-la-microfluidique>. [Accès le 18 Avril 2013].
- [54] E. Sollier, C. Murray, P. Maoddi et D. Di Carlo, «Rapid prototyping polymers for microfluidic devices and high pressure injections», *Lab on a Chip*, vol. 11, pp. 3752-3765, 2011.
- [55] P. Woias, «Micropumps – summarizing the first two decades», *Proc. of SPIE*, vol. 4560, pp. 39-52, 2001.
- [56] F. Abhari, H. Jaafar et N. Yunus, «A Comprehensive Study of Micropumps Technologies», *International Journal of electrochemical science*, vol. 7, pp. 9765 - 9780, 2012.
- [57] L. Thomas et S. Bessman, «Prototype for an implantable micropump powered by piezoelectric disk benders», *Trans. Amer. Soc. Artif. Organs*, vol. 21, pp. 516-520, 1975.
- [58] W. Spencer, W. Corbett, L. Dominguez et B. Shafer, «An electronically controlled piezoelectric insulin pump and valves», *IEEE Trans. Sonics Ultrason*, vol. 25, pp. 153-156, 1978.
- [59] H. Vanlintel, F. Vandepol et S. A. Bouwstra, «A piezoelectric micropump based on micromachining of silicon», *Sensors & actuator*, vol. 15, pp. 153-167, 1988.
- [60] J. Smits, «Piezoelectric micropump with 3 valves working peristaltically», *Sensors & actuators A*, vol. 21, pp. 203-206, 1990.
- [61] M. Tracey, I. Johnston, J. Davis et C. Tan, «Dual independent displacement-amplified micropumps with a single actuator», *J. Micromech. Microeng*, vol. 16, pp. 1444-1452, 2006.
- [62] X. Li, W. Yan, Y. Xu et Y. Chen, «Design and fabrication of valveless piezoelectric micropump in parallel with double chambers based on MEMS technology», *Piezoelectrics and Acousto-optics*, vol. 32, pp. 611-614, 2010.
- [63] A. Wego et L. Pagel, «A self-filling micropump based on PCB technology», *Sensors and Actuators A*, vol. 88, pp. 220-226, 2001.
- [64] B. Büstgens, W. Bacher, W. Bier, R. Ehnes, D. Maas, R. Ruprecht, W. Schomburg et L. Keydel, «Micromembrane pump manufactured by molding», *Proceedings of the 4th International Conference on New Actuators*, pp. 86-90, 1994.
- [65] R. Zengerle, J. Ulrich, S. Kluge, M. Richter et A. Richter, «A bidirectional silicon micropump», *Sensors and Actuators A*, vol. 50, pp. 81-86, 1995.
- [66] C. Cabuz, W. Herb, E. Cabuz et S. Lu, «The dual diaphragm pump», *The 14th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems*, pp. 519-522, 2001.
- [67] S. Alzuaga, *Manipulation de gouttes de liquides par des méthodes acoustiques*, Thèse de doctorat de l'Université de Franche-comté, 2004.
- [68] A. Au, H. Lai, B. Utela et A. Folch, «Microvalves and Micropumps for BioMEMS», *Micromachines*, vol. 2, pp. 179-220, 2011.
- [69] S. Guo, X. Sun, K. Ishii et J. Guo, «SMA actuator-based novel type of peristaltic micropump», *Proceedings of the 2008 IEEE International Conference on Information and Automation, ICIA 2008*, pp. 1620-1625, Juin 2008.
- [70] H. Zhang et C. Qiu, «Characteristic of TiNi(Cu) shape memory thin film based on micropump», *Proc. SPIE 7493, Second International Conference on Smart Materials and Nanotechnology in Engineering*, 2009.
- [71] Y. Zhou et F. Amirouche, «An Electromagnetically-Actuated All-PDMS Valveless Micropump for Drug Delivery», *Micromachines*, vol. 2, pp. 345-355, 2011.

- [72] C. Zhang, D. Xing et Y. Li, «Micropumps, microvalves, and micromixers within PCR microfluidic chips Advances and trends», *Biotechnology Advances*, vol. 25, pp. 483-514, 2007.
- [73] P. Atten, *Les forces en électrohydrodynamique*, Thèse de doctorat de l'université de Grenoble, 1969.
- [74] A. Richter, A. Plettner, K. Hofmann et H. Sandmaier, «A micromachined electrohydrodynamic (EHD) pump», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 29, p. 159–168, 1991.
- [75] E. Livak-Dahl, I. Sinn et M. Burns, «Microfluidic Chemical Analysis Systems», *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.*, vol. 2, pp. 325-353, 2011.
- [76] X. Wang, C. Cheng, S. Wang et S. Liu, «Electroosmotic pumps and their applications in microfluidic system», *Microfluid Nanofluid*, vol. 6, pp. 145-162, 2009.
- [77] A. Lemoff et A. Lee, «An AC magnetohydrodynamic micropump», *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 63, pp. 138-146, 2000.
- [78] Y. Fouillet et J. Achard, «Microfluidique discrète et biotechnologie», *C. R. Physique*, vol. 5, p. 577–588, 2004.
- [79] I. Platzmann, J. Janiesch et J. Pius Spatz, «synthesis of nanostructured and biofunctionalized water in oil droplets as tools for homing t cells», *Journal of the american chemical society*, vol. 135, pp. 3339-3342, 2013.
- [80] S. Siddiqui et I. Norton, «Oil-in-water emulsification using confined impinging jets», *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 377, pp. 213-221, 2012.
- [81] T. Krebs, C. Schroën et R. Boom, «Coalescence kinetics of oil-in-water emulsions studied with microfluidics», *Fuel*, vol. 106, pp. 327-334, 2013.
- [82] C. Roberts, R. Rao, M. Loewenberg, C. Brooks, P. Galambos, A. Grillet et M. Nemer, «Comparison of monodisperse droplet generation in flow-focusing devices with hydrophilic and hydrophobic surfaces», *Lab on a chip*, vol. 12, p. 1540–1547, 2012.
- [83] T. Thorsen, R. Roberts, F. Arnold et S. Quake, «Dynamic Pattern Formation in a Vesicle-Generating Microfluidic Device», *Physical review letters*, vol. 86, pp. 4163-4166, 2001.
- [84] P. Garstecki, M. Fuerstman, H. Stone et G. Whitesides, «Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction scaling and mechanism of break-up», *Lab on a Chip*, vol. 6, p. 437–446, 2006.
- [85] J. Knight, A. Vishwanath, J. Brody et R. Austin, «Hydrodynamic Focusing on a Silicon Chip: Mixing Nanoliters in Microseconds», *Physical review letters*, vol. 80, pp. 3863-3866, 1998.
- [86] A. Gañán-Calvo, «Generation of steady liquid microthreads and micron-sized monodisperse sprays in gas streams», *Physical Review Letters*, vol. 80, pp. 285-288, 1998.
- [87] S. Anna, N. Bontoux et H. Stone, «Formation of dispersions using “flow focusing” in microchannels», *Applied Physics Letters*, vol. 82, pp. 364-366, 2003.
- [88] P. Umbanhowar, V. Prasad et D. Weitz, «Monodisperse Emulsion Generation via Drop Break Off in a Coflowing Stream», *Langmuir*, vol. 16, pp. 347-351, 2000.
- [89] S. Sugiura, M. Nakajima et M. Seki, «Prediction of Droplet Diameter for Microchannel emulsification», *Langmuir*, vol. 18, pp. 3854-3859, 2002.
- [90] T. Cubaud et T. Mason, «Capillary threads and viscous droplets in square microchannels», *Physics of fluids*, vol. 20, p. 053302, 2008.
- [91] S. Teh, R. Lin, L. Hung et A. Lee, «Droplet microfluidics», *Lab on a Chip*, vol. 8, pp. 198-220, 2008.

- [92] A. MARCATI, Génération de particules de polymères à structure contrôlée par la microfluidique, Toulouse, PhD, 2009.
- [93] H. Song, M. Bringer, J. Tice, C. Gerdtts et R. Ismagilov, «Experimental test of scaling of mixing by chaotic advection in droplets moving through microfluidic channels», *Applied Physics Letters*, vol. 83, pp. 4664-4666, 2003.
- [94] C. Holtze, «Large-scale droplet production in microfluidic devices—an industrial perspective», *Journal of physics D: Applied physics*, vol. 46, p. 114008, 2013.
- [95] J. Sander, L. Isa, P. Rühs, P. Fischer et A. Studart, «Stabilization mechanism of double emulsions made by microfluidics», *Soft Matter*, vol. 8, p. 11471, 2012.
- [96] W. Jeong, M. Choi, C. Ho lim et S. Yang, «Microfluidic synthesis of atto-liter scale double emulsions toward ultrafine hollow silica spheres with hierarchical pore networks», *lab on chip*, vol. 12, pp. 5262-5271, 2012.
- [97] W. Wang, R. Xie, X. Ju, T. Luo, L. Liu, D. Weitzb et L. Chu, «Controllable microfluidic production of multicomponent multiple emulsions», *Lab on a Chip*, p. DOI: 10.1039/c1lc20065h, 2011.
- [98] Y. Tan et A. Lee, «Microfluidic separation of satellite droplets as the basis of a monodispersed micron and submicron emulsification system», *Lab on a Chip*, vol. 5, pp. 1178-1183, 2005.
- [99] A. Gao, X. Liu, T. Li, X. Gao et Y. Wang, «Thermocapillary Actuation of Droplets on a Microfluidic Chip», *Journal of Adhesion Science and Technology*, vol. 26, pp. 2165-2176, 2012.
- [100] A. Buguin, L. Talini et P. Silberzan, «Ratchet-like topological structures for the control of microdrops», *Applied Physics A –Materials Science & Processing*, vol. 75, p. 207–212, 2002.
- [101] D. Baigl, «Photo-actuation of liquids for light-driven microfluidics state of the art and perspectives», *Lab on a Chip*, vol. 12, p. 3637–3653, 2012.
- [102] M. Lippmann, *Annales de chimie et de physique*, vol. 5, p. 494, 1875.
- [103] G. Beni et S. Hackwood, «Electrowetting displays», *Applied physics letters*, vol. 38, pp. 207-209, 1981.
- [104] G. Beni et M. Tenan, «Dynamics of electrowetting displays», *Journal of applied physics*, vol. 52, pp. 6011-6015, 1981.
- [105] P. Chudleigh, «Mechanism of charge transfer to a polymer surface by a conducting liquid contact», *Journal of applied physics*, vol. 47, pp. 4475-4483, 1976.
- [106] B. Berge, «Électrocapillarité et mouillage de films isolants par l'eau», *Comptes rendus de l'Académie des sciences*, vol. 313, pp. 157-163, 1993.
- [107] P. de Gennes, «Wetting: statics and dynamics», *Reviews of Modern Physics*, vol. 57, pp. 827-863, 1985.
- [108] B. Berge et J. Peseux, «Variable focal lens controlled by an external voltage An application of electrowetting», *The european physical journal E*, vol. 3, p. 159–163, 2000.
- [109] S. Kwon et L. Lee, «Focal Length Control by Microfabricated Planar Electrodes-based Liquid Lens (μ pell)», *Proc. 11th International Conference on Solid State Sensors and Actuators Transducers*, vol. 1342, pp. 1348-1351, 2001.
- [110] J. Lee et C. Kim, «Surface-tension-driven microactuation based on continuous electrowetting», *Journal of microelectromechanical systems*, vol. 9, pp. 171-180, 2000.

- [111] H. Matsumoto et J. Colgate, «Preliminary investigation of micropump based on electrical control of interfacial tension», Proc. IEEE of Micro Electro Mechanical Systems conference, pp. 105-110, 1990.
- [112] Colgate, «An Investigation Of Electrowetting-Based Microactuation», Journal of Vacuum Science & Technology A, vol. 8, pp. 3625-3633, 1990.
- [113] K. Yun, I. Cho, J. Bu, C. Kim et E. Yoon, «A surface-tension driven micropump for low-voltage and low-power operations», Journal of microelectromechanical systems, vol. 11, pp. 454-461, 2002.
- [114] M. Pollack et R. Fair, «Electrowetting-based actuation of liquid droplets for microfluidic applications», Applied Physics Letters, vol. 77, pp. 1725-1726, 2000.
- [115] M. Pollack, Electrowetting-based microactuation of droplet for digital microfluidics, Thèse de doctorat de l'Université de Duke, Etats Unis d'Amérique, 2001.
- [116] J. Lee, H. Moon, J. Fowler, C. Kim et T. Schoellhammer, «Addressable micro liquid handling by electric control of surface tension», Proceedings of the IEEE Micro Electro Mechanical Systems, pp. 499-502, 2001.
- [117] S. Cho et H. Moon, «Electrowetting on Dielectric (EWOD) New Tool for BioMicro Fluids Handling», BioChip Journal, vol. 2, pp. 79-96, 2008.
- [118] W. Nelson et C. Kim, «Droplet Actuation by Electrowetting-on-Dielectric (EWOD): A Review», Journal of Adhesion Science and Technology, vol. 26, p. 1747–1771, 2012.
- [119] K. Choi, A. Ng, R. Fobel et A. Wheeler, «Digital Microfluidics», Annual review of analytical chemistry, vol. 5, p. 413–440, 2012.
- [120] R. Fair, «Digital microfluidics: is a true lab-on-a-chip possible?», Microfluid Nanofluid, vol. 3, p. 245–281, 2007).
- [121] D. Millington, R. Sista, A. Eckhardt, J. Rouse, D. Bali, R. Goldberg, M. Cotten, R. Buckley et V. Pamula, «Digital Microfluidics A Future Technology in the Newborn Screening Laboratory», Semin Perinatol, vol. 34, pp. 163-169, 2010.
- [122] N. Rajabi et A. Dolatabadi, «A novel electrode shape for electrowetting-based microfluidics», Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects, vol. 365, p. 230–236, 2010.
- [123] R. Sista, Z. Hua, P. Thwar, A. Sudarsan, V. Srinivasan, A. Eckhardt, M. Pollack et V. Pamula, «Development of a digital microfluidic platform for point of care testing», Lab on a Chip, vol. 8, p. 2091–2104, 2008.
- [124] R. Malk, Ecoulements en gouttes activés par électromouillage, Thèse de doctorat de l'Université de Grenoble, 2006.
- [125] R. Malk, Y. Fouilleta et L. Davoust, «Rotating flow within a droplet actuated with AC EWOD», Procedia Chemistry, vol. 1, p. 1107–1110, 2009.
- [126] R. Malk, Y. Fouillet et L. Davoust, «Rotating flow within a droplet actuated with AC EWOD», Sensors and Actuators B: Chemical, vol. 154, p. 191–198, 2011.
- [127] H. Liu, S. Dharmatilleke, D. Maurya et A. Tay, «Dielectric materials for electrowetting-on-dielectric actuation», Microsystem Technologies, vol. 16, p. 449–460, 2010.
- [128] S. Chung, K. Rhee et S. Cho, «Bubble Actuation by Electrowetting-on-Dielectric (EWOD) and Its Applications : a review», International Journal of Precision Engineering and Manufacturing, vol. 11, pp. 991-1006, 2010.
- [129] F. Lapierre, Electromouillage sur diélectrique (EWOD) : Conception et réalisation de dispositifs microfluidiques originaux sur surface superhydrophobe, PhD. Thesis, Université de Lille 1, 2011.

- [130] R. Malk, *Ecoulements en gouttes activés par électromouillage*, PhD. Thesis, Université de Grenoble, 2012.
- [131] W. Weiqiang, *On-Chip Double Emulsion Droplet Assembly Using Electrowetting on-Dielectric and Dielectrophoresis*, Thèse de doctorat de l'Université de Rochester, 2012.
- [132] S. Cho, H. Moon et C. Kim, «Creating, Transporting, Cutting, and Merging Liquid Droplets by Electrowetting-Based Actuation for Digital Microfluidic Circuits», *JOURNAL OF MICROELECTROMECHANICAL SYSTEMS*, vol. 12, pp. 70-80, 2003.
- [133] P. Dubois, G. Marchand, S. Gmouh et M. Vaultier, «Reaction Rates as a Function of Scale within Ionic Liquids: Microscale in Droplet Microreactors versus Macroscale Reactions in the Case of the Grieco Three-Component Condensation Reaction», *Chemistry - A European Journal*, vol. 13, p. 5642 – 5648, 2007.
- [134] W. Wang, Z. Li, R. Luo, S. Lü et A. Xu, «Droplet-based micro oscillating-flow PCR chip», *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 15, p. 1369–1377, 2005.
- [135] V. Srinivasan, V. Pamula et R. Fair, «An integrated digital microfluidic lab-on-a-chip for clinical diagnostics on human physiological fluids», *Lab on a chip*, vol. 4, pp. 310-315, 2004.
- [136] A. Wheeler, H. Moon, C. Bird, R. Ogorzalek Loo, C. Kim, J. Loo et R. Garrell, «Digital Microfluidics with In-Line Sample Purification for Proteomics Analyses with MALDI-MS», *Analytical Chemistry*, vol. 77, pp. 534-540, 2005.
- [137] V. Pamula, V. Srinivasan, H. Chakrapani, R. Fair et E. Toone, «A droplet-based lab-on-a-chip for colorimetric detection of nitroaromatic explosives», *Proceedings of the IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)*, pp. 722-725 , 2005.
- [138] R. Sista, A. Eckhardt, V. Srinivasan, M. Pollack, S. Palanki et V. Pamula, «Heterogeneous immunoassays using magnetic beads on a digital microfluidic platform», *Lab on a chip*, vol. 8, p. 2188–2196, 2008.
- [139] A. J. Slobodnik, *Materials and their influence on performance, Acoustic Surface Waves*, vol. 24, Springer, 1978, p. 226–303.
- [140] H. Nakahata, K. Higaki, S. Fujii, A. Hachigo, H. Kitabayashi, K. Tanabe, S. Y et S. Shikata, «SAW devices on diamond», *Proceedings of the IEEE Ultrasonics Symposium*, vol. 1, pp. 361-370, 1995.
- [141] L. Reindl, I. Shrena, S. Kenshil et R. Peter, «Wireless Measurement of Temperature Using Surface Acoustic Waves Sensors», *Proceedings of the 2003 IEEE International Frequency Control Symposium*, pp. 935-941, 2003.
- [142] R. Shilton, M. Tan, L. Yeo et J. Friend, «Particle concentration and mixing in microdrops driven by focused surface acoustic waves», *Journal of applied physics*, vol. 104, p. 014910, 2008.
- [143] X. Du, M. Swanwick, Y. Fu, J. Luo, A. Flewitt, D. Lee, M. S et W. Milne, «Surface acoustic wave induced streaming and pumping in 128° Y-cut LiNbO₃ for microfluidic applications», *Journal of micromechanics and microengineering*, vol. 19, p. 035016, 2009.
- [144] A. Renaudin, P. Tabourier, V. Zhang, J. Camart et C. Druon, «SAW nanopump for handling droplets in view of biological applications», *Sensors and Actuators B*, vol. 113, p. 389–397, 2006.
- [145] J. Kondoh, N. Shimizub, Y. Matsuc, M. Sugimotod et S. Shiokawae, «Development of temperature-control system for liquid droplet using surface Acoustic wave devices», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 149, p. 292–297, 2009.

- [146] A. Qi, L. Yeo, J. Friend et J. Ho, «The extraction of liquid, protein molecules and yeast cells from», *Lab on a Chip*, vol. 10, p. 470–476, 2009.
- [147] A. Zhang, Z. Wua et X. Xiaa, «Transportation and mixing of droplets by surface acoustic wave», *Talanta*, vol. 84, pp. 293-297, 2011.
- [148] R. Shilton, M. Tan, L. Yeo et J. Friend, «Particle concentration and mixing in microdrops driven by focused surface acoustic waves», *Journal of applied physics*, vol. 104, p. 014910, 2008.
- [149] P. Rogers, J. Friend et L. Yeo, «Exploitation of surface acoustic waves to drive size-dependent microparticle concentration within a droplet», *Lab on a Chip*, vol. 10, p. 2979–2985, 2010.
- [150] M. Jo et R. Guldiken, «Dual surface acoustic wave-based active mixing in a microfluidic channel», *Sensors and Actuators A*, vol. 196, p. 1–7, 2013.
- [151] Q. Zenga, F. Guoa, L. Yaoa, H. Zhua, L. Zhenga, Z. Guoa, W. Liua, Y. Chenb, S. Guoa et X. Zhaoa, «Milliseconds mixing in microfluidic channel using focused surface acoustic wave», *Sensors and Actuators B*, vol. 160, p. 1552–1556, 2011.
- [152] D. Beyssen, Conception, étude et réalisation de micro-capteur et micro-actionneurs chimiques et biologiques à base de dispositifs à ondes acoustiques de surface, Université Henri Poincaré Nancy-I, Nancy, 2006.
- [153] S. Ito, M. Sugimoto, Y. Matsui et J. kondoh, «Study of Surface Acoustic Wave Streaming Phenomenon Based on Temperature Measurement and Observation of Streaming in Liquids».
- [154] Y. Zha et A. Zhang, «A microreactor using surface acoustic wave as energy source», *Proceedings of the 2012 Symposium on Piezoelectricity, Acoustic Waves and Device Applications, SPAWDA*, pp. 215-218, 2012.
- [155] A. Zhang, Y. Wei et Q. Han, «A Microreactor With Surface Acoustic Wave Micro-Heating System», *Ferroelectrics*, vol. 432, pp. 22-31, 2012.
- [156] L. Yeo, Z. Gagnon et H. Chang, «AC electro spray biomaterials synthesis», *Biomaterials*, vol. 26, p. 6122–6128, 2005.
- [157] O. Basaran, «Small-Scale Free Surface Flows with Breakup: Drop Formation and Emerging Applications», *AIChE Journal*, vol. 48, pp. 1842-1848, 2004.
- [158] A. Watts, J. McConville et R. Williams III, «Current Therapies and Technological Advances in Aqueous Aerosol Drug Delivery», *Drug Development and Industrial Pharmacy*, vol. 34, pp. 913-922, 2008.
- [159] A. Gañán-Calvo, «Generation of Steady Liquid Microthreads and Micron-Sized Monodisperse Sprays in Gas Streams», *Physical review letters*, vol. 80, pp. 285-288, 1998.
- [160] J. Ijsebaert, K. Geerse, J. Marijnissen, J. Lammers et P. Zanen, «Electro-hydrodynamic atomization of drug solutions for inhalation purposes», *Journal of Applied Physiology*, vol. 91, pp. 2735-2741, 2001.
- [161] R. Lang, «Ultrasonic Atomization of Liquids», *Journal of the acoustical society of america*, vol. 34, pp. 6-8, 1962.
- [162] A. Qi, L. Yeo et J. Friend, «Interfacial destabilization and atomization driven by surface acoustic waves», *Physics of Fluids*, vol. 20, p. 074103, 2008.
- [163] A. Qi, J. Friend, L. Yeo, D. Morton, M. McIntoshb et L. Spiccia, «Miniature inhalation therapy platform using surface acoustic wave microfluidic atomization», *Lab on a Chip*, vol. 9, p. 2184–2193, 2009.

- [164] L. Yeo et J. Friend, «Ultrafast microfluidics using surface acoustic waves», *Biomicrofluidics*, vol. 3, p. 012002, 2009.
- [165] J. Ho, M. Tan, D. Go, L. Yeo, J. Friend et H. Chang, «Paper-based microfluidic surface acoustic wave sample delivery and ionization source for rapid and sensitive ambient mass spectrometry», *Analytical Chemistry*, vol. 83, pp. 3260-3266, 2011.
- [166] X. Ding, S. Lin, M. Lapsley, S. Li, X. Guo, C. Chan, I. Chiang, L. Wang, J. McCoy et T. Huang, «Standing surface acoustic wave (SSAW) based multichannel cell sorting», *Lab on a chip*, vol. 12, p. 4228-4231, 2012.
- [167] L. Schmida et T. Franke, «SAW-controlled drop size for flow focusing», *Lab on a chip*, vol. 13, p. 1691-1694, 2013.
- [168] Y. Li, Y. Fu, S. Brodie, M. Alghane et A. Walton, «Integrated microfluidics system using surface acoustic wave and electrowetting on dielectrics technology», *Biomicrofluidics*, vol. 6, p. 012812, 2012.
- [169] I. Voiculescu et A. Nordin, «Acoustic wave based MEMS devices for biosensing applications», *Biosensors and Bioelectronics*, vol. 33, pp. 1-9, 2012.
- [170] V. Raimbault, D. Rebière, C. Dejous, M. Guirardel, J. Pistré et J. Lachaud, «High frequency microrheological measurements of PDMS fluids using saw microfluidic system», *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 144, p. 467-471, 2010.
- [171] K. Mitsakakis, A. Tserepi et E. Gizeli, «SAW device integrated with microfluidics for array-type biosensing», *Microelectronic Engineering*, vol. 86, p. 1416-1418, 2009.
- [172] H. Bruus, «Acoustofluidics 1: Governing equations in microfluidics», *Lab on a Chip*, vol. 11, pp. 3742-3751, 2011.
- [173] H. Bruus, *Theoretical microfluidics*, MIC - Department of Micro and Nanotechnology - Technical University of Denmark, 2006.
- [174] A. Majda et A. Bertozzi, *Vorticity and incompressible flow*, Cambridge: Cambridge University Press 2002, 2002.
- [175] I. Gallagher, «Autour des équations de Navier-Stokes», 28 01 2010. [En ligne]. Available: <http://images.math.cnrs.fr/Autour-des-equations-de-Navier.html>. [Accès le 25 02 2013].
- [176] L. P. Euler, «Principes généraux du mouvement des fluides», *Mémoires de l'Academie des Sciences de Berlin*, 1757.
- [177] S. Colin, *Microfluidique*, Hermes Science publication, 2004.

Chapitre 2

Les dispositifs à ondes élastiques de surface et la microfluidique

Chapitre II : Les dispositifs à ondes élastiques de surface et la microfluidique

Les dispositifs à ondes élastiques de surface (Surface Acoustic Wave – SAW) sont utilisés dans de nombreux domaines industriels et grand public. On parle souvent de leurs applications, du principe de fonctionnement, de leurs intérêts ou encore de leurs avantages et inconvénients mais on ne leur donne que très rarement une définition claire et précise [1] [2]. Il est plutôt difficile d'en donner une simple puisqu'ils sont la combinaison de plusieurs concepts physiques et technologiques. Pour comprendre ce qu'est un dispositif SAW, il faut d'abord intégrer ces différents concepts à savoir l'effet piézoélectrique, les ondes élastiques de surface et les transducteurs interdigités.

II.A. Les dispositifs à ondes élastiques de surface

II.A.1. L'effet piézoélectrique

II.A.1.1. Historique

C'est historiquement en 1881 que les frères J. Curie et P. Curie ont découvert et démontré théoriquement et expérimentalement l'existence de l'effet piézoélectrique direct dans certains cristaux comme le quartz [179] [180]. L'effet piézoélectrique direct, tel qu'ils l'ont observé, est la capacité d'un matériau à se polariser électriquement sous l'action d'une contrainte mécanique. L'année suivante, le physicien G. Lippmann propose la réciproque : ces mêmes matériaux devraient se déformer lors de l'application d'un champ électrique. Les frères Curie démontrent immédiatement cette hypothèse expérimentalement [180] [5].

II.A.1.2. Exemples d'application

Pour le grand public, les applications faisant appel à l'effet piézoélectrique sont diverses avec notamment, en matière de piézoélectricité directe, l'allumage (l'étincelle) des briquets automatiques ou encore de la plaque de cuisson à gaz. La pression exercée produit une tension électrique qui se décharge brutalement sous forme d'étincelles. L'effet piézoélectrique inverse est très utilisé pour la conception d'actionneurs comme dans les systèmes autofocus des appareils photos, dans les montres à quartz ou encore dans les injecteurs à commande piézoélectrique en automobile. On trouve aussi ces actionneurs pour le positionnement des têtes de lecture des disques durs rotatifs et des lecteurs CD et DVD. Des appareils d'analyses de précision tels que les AFM (Atomic Force Microscope) et STM (Scanning Tunneling Microscope) profitent des capacités de positionnement de ces actionneurs piézoélectriques. Les recherches à propos de la piézoélectricité ont pris leur essor pendant la première guerre mondiale avec l'invention du sonar pour le repérage et la détection sous-marine. Cette technique use des deux effets piézoélectriques à la fois, tout comme l'échographie ou encore le filtrage acoustique.

Nous allons maintenant définir ce qu'est une onde élastique de surface avant de présenter leur principe de génération par effet piézoélectrique.

II.A.2. Les ondes élastiques de surface

II.A.2.1. Définition

Une onde est définie par une modification de l'état physique d'un milieu matériel ou immatériel et qui se propage, à la suite d'une action locale, avec une vitesse finie et déterminée par les propriétés des milieux traversés [6]. Deux grandes familles d'ondes existent : les ondes électromagnétiques et les ondes mécaniques que nous ciblerons ici. On parle de celles-ci lorsqu'une perturbation locale se propage dans un milieu matériel (alors que les ondes électromagnétiques le peuvent aussi dans le vide). Les ondes élastiques, par définition, se propagent dans un milieu élastique, c'est à dire un milieu capable de se déformer sous l'action d'une contrainte mécanique et de reprendre sa forme initiale une fois cette contrainte révolue.

Lorsque l'on soumet à un matériau une perturbation, des contraintes sont générées entraînant la propagation d'une onde mécanique. Celle-ci se propage de proche en proche dans le milieu et transfère de l'énergie sans transfert de matière : l'onde sonore, les vagues et les ondes sismiques sont des exemples de ce type d'onde. En ce qui concerne les ondes élastiques dans les solides, deux cas existent [7] [8]:

- Dans les solides homogènes illimités

On parle ici d'onde de volume (Figure II.1 a). On distingue deux types d'ondes de volumes : les ondes de compression ou longitudinales et les ondes de cisaillement, dites aussi transversales ou latérales et nommées respectivement en sismologie onde P et onde S. L'onde longitudinale se propage en un mouvement de compressions-dilatations entraînant un déplacement d'avant en arrière des particules et engendrant localement une variation de volume du matériau [9]. L'onde de cisaillement se propage plus lentement que la précédente. Elle est fortement atténuée par les liquides et entraîne les particules dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation induisant un déplacement vertical des particules [9].

- Dans les solides limités

Plusieurs types d'ondes peuvent être générés. On entend ici des ondes guidées :

- Par une surface libre d'un milieu : les ondes élastiques de surface (Figure II.1 b).
- Par deux surfaces parallèles : les ondes dites de Lamb. Celles-ci se propagent en se réfléchissant alternativement sur l'une des surfaces puis sur l'autre.
- Par une structure multicouche.

Nous nous intéresserons uniquement, dans cette étude, aux ondes guidées par la surface libre d'un milieu : les ondes élastiques de surface (Figure II.1 b). Celles-ci se propagent plus lentement que les ondes de volume mais ont souvent une plus grande amplitude.

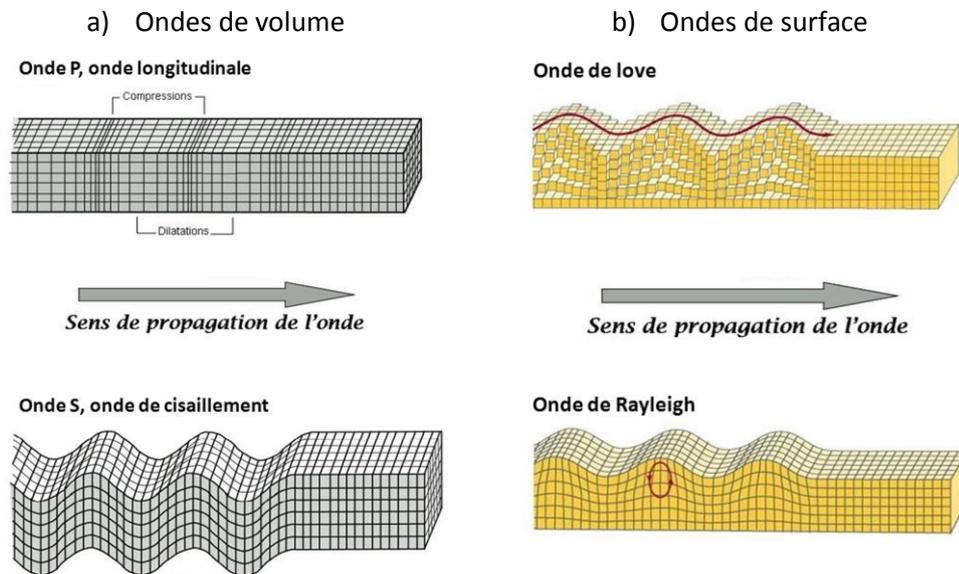


Figure II.1 : Exemples d'ondes élastiques de volume (a) avec l'onde longitudinale et des ondes de cisaillement, et des ondes de surface (b) avec l'onde de Love et l'onde de Rayleigh

II.A.2.2. Types d'ondes élastiques de surface

II.A.2.2.1. Les modes de surface purs et l'onde de Rayleigh

Les ondes élastiques de surface sont des ondes qui se propagent parallèlement à la surface d'un solide (le vecteur d'onde et le vecteur de flux d'énergie sont parallèles à la surface). L'amplitude de l'onde élastique décroît de manière exponentielle avec la profondeur du solide. Si λ est la longueur d'onde des ondes élastiques de surface, on considère que la quasi-totalité de l'énergie des ondes est comprises dans une profondeur de $3.\lambda$ [1] [7] [8] [10]. Il existe plusieurs modes de propagation des ondes élastiques. Ces modes se divisent principalement en trois groupes [7] [8]:

- Les ondes de Rayleigh
- Les ondes STW (Surface Transverse Wave)
- Les ondes LSAW (Leaky Surface Acoustic Wave)

Les ondes élastiques de Rayleigh ont été découvertes par John William Strutt Rayleigh en 1885 [11]. Ces ondes possèdent deux composantes de déplacement mécanique longitudinal et transversal dans le plan sagittal. La Figure II.1 b) montre la structure des ondes de Rayleigh et l'ondulation de la surface provoquée par leur propagation [7] [8]. Cette onde se propage de manière complexe puisqu'elle est la combinaison d'ondes transversales et longitudinales déphasées de $\pi/2$ (u_1 et u_2 sur la Figure II.2 a). On dit alors qu'elle possède une polarisation elliptique (Figure II.2 b) [1].

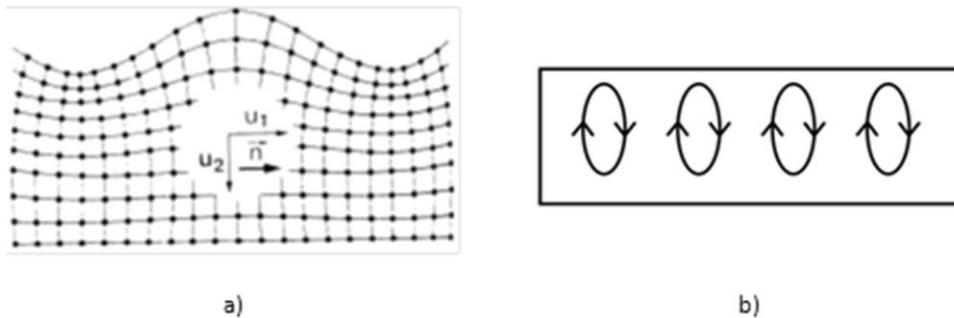


Figure II.2 : Propagation des ondes de Rayleigh et ondulation de surface a) et polarisation elliptique dans le plan contenant la normale à la surface et la direction de propagation (plan sagittal) des ondes de Rayleigh b)

II.A.2.2.2. Autres ondes élastiques

Il existe de nombreux types d'ondes élastiques de surface ou d'autres possédant plusieurs caractéristiques d'onde élastique sans pour autant être des modes purs de ce type d'onde. Nous allons en citer quelques-uns sans détailler leur principe de génération et leurs caractéristiques :

- Les ondes de Love (STW) [12]
- Les ondes de Lamb (STW) [8]
- Les ondes Leaky [1]

Les différents types d'ondes élastiques dans les solides s'obtiennent sous des conditions bien déterminées qui dépendent principalement de la nature du solide [8] [13] [14]. Pour les solides piézoélectriques, ces types d'ondes élastiques peuvent se propager et leurs générations se fait à l'aide d'électrodes métalliques dont nous allons détailler le fonctionnement.

II.A.3. Génération et détection des ondes élastiques de surface

Le principe de génération et de détection d'ondes élastiques de surface par des électrodes interdigitées sur la surface d'un cristal piézoélectrique a été découvert en 1970 par R.M. White et Joshi S.G. [15] [16]. Cette découverte a permis une nette avancée dans les domaines des télécommunications et des capteurs et plus récemment dans la microfluidique. Ces électrodes sont fabriquées par des techniques de photolithographie issues de la

microélectronique et appelées transducteurs interdigités (IdT : Interdigital Transducers). Elles sont très utilisées pour la réalisation de dispositifs à ondes élastiques de surface. On rencontre plusieurs variantes géométriques induisant des réponses fréquentielles différentes en fonction des applications visées.

II.A.3.1. Principe de fonctionnement des IdTs

II.A.3.1.1. Généralités

Les ondes élastiques de surface sont générées et détectées sur des matériaux piézoélectriques par des transducteurs interdigités déposés en fine couche métallique de l'ordre de la centaine de nanomètres. Ces derniers comprennent deux électrodes en forme de peigne encastrées l'une dans l'autre comme le montre la Figure II.3. Une tension électrique sinusoïdale appliquée entre les deux électrodes crée un champ électrique périodique qui engendre, par effet piézoélectrique inverse, des compressions et des dilatations au voisinage de la surface. Le champ de déformation ainsi généré dans le cristal piézoélectrique induit des ondes élastiques qui se propagent de manière cohérente pour certaines fréquences. En particulier, certains modes peuvent correspondre à des ondes de surface. Ces ondes sont émises de chaque côté de l'IdT et le front d'onde est parallèle aux doigts des électrodes [17].

La longueur d'onde λ , en mètre, est fixée par la période des structures interdigitées. Celle-ci est définie par la distance entre deux doigts consécutifs d'une même électrode dans le cas d'une structure simple comme celle représentée à la Figure II.3. La fréquence d'excitation optimale f_0 , en Hz, du dispositif peut être déterminée par la relation suivante :

$$f_0 = \frac{v}{\lambda} = \frac{v}{d} \quad (II.1)$$

avec v la vitesse de phase de l'onde en $m.s^{-1}$. La vitesse dépend du type de matériau piézoélectrique utilisé, de l'orientation du transducteur sur celui-ci et de l'orientation cristallographique.

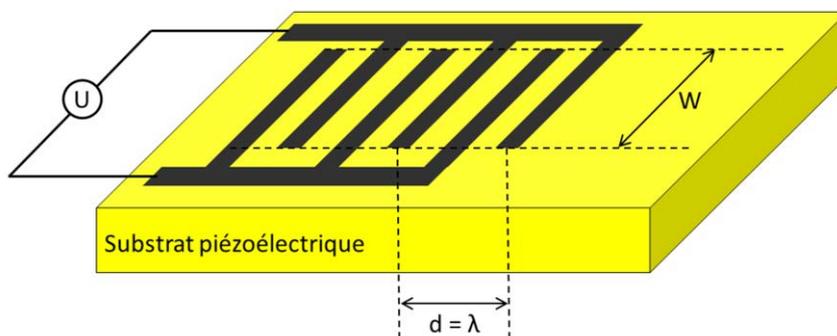


Figure II.3 : Transducteur interdigité sur un substrat piézoélectrique

II.A.3.1.2. Réponse fréquentielle d'un transducteur interdigité

Chaque paire de doigts d'un IdT peut être assimilée à une source discrète pour la génération d'ondes acoustiques de surface [10]. Une tension U_1 appliquée entre les doigts est directement liée au potentiel électrique associé aux ondes générées dans chaque direction par une simple fonction de transfert [18]:

$$\Phi^{\pm} = \mu_s \cdot U_1 \quad (II.2)$$

où Φ^+ et Φ^- sont les potentiels associés à l'onde se propageant à droite et à gauche de l'IdT respectivement et μ_s une constante dépendante du substrat. La réponse fréquentielle du transducteur découle principalement des interférences entre les contributions des doigts et est indépendante de la réponse fréquentielle des éléments individuels. μ_s peut être considérée indépendante de la fréquence.

Lorsqu'un champ électrique est appliqué à l'IdT, le potentiel associé à l'onde se propageant à droite Φ^+ évalué à la position z est la somme des contributions de chaque doigt :

$$\Phi^+ = \mu_s \cdot \sum_{n=0}^{N_f-1} U_n e^{jk(z-z_n)} \quad (II.3)$$

avec z_n la position du $n^{\text{ème}}$ doigt excité à la tension U_n , N_f le nombre total de doigts et k le vecteur d'onde. La précédente équation est une forme de la transformée de Fourier discrète de la tension U_n [19]. Par conséquent, la réponse fréquentielle du dispositif est proportionnelle à la transformée de Fourier de la contribution de chaque doigt de l'IdT. Ainsi, si tous les doigts (N_f) sont identiques et espacés périodiquement d'une période ($d = \lambda$) et excités par des tensions alternatives $U_n = (-1)^n U_0$, l'équation précédente devient :

$$\Phi^+(0) = \mu_s U_0 \sum_{n=0}^{N_f-1} (-1)^n e^{-jnk \frac{d}{2}} \quad (II.4)$$

La somme de l'équation (II.4) représente une série géométrique dont les éléments sont égaux à l'unité et s'additionnent constructivement lorsque $\frac{kd}{2} = m\pi$ avec m entier impair. Ainsi, cette condition permet de définir la relation entre la longueur d'onde SAW λ et la période du transducteur d pour une condition cohérente comme le montre la Figure II.4. De ce fait, il est possible d'exciter l'électrode interdigitée à la fréquence de résonance, mais aussi aux multiples de la fréquence de synchronisme $f_m = m \cdot f_0$.

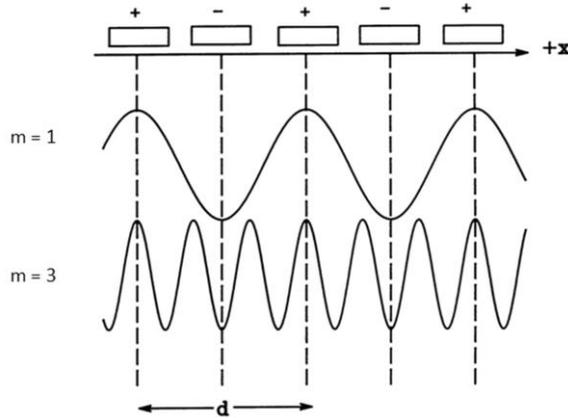


Figure II.4 : Relation entre la périodicité du transducteur et la longueur d'onde des ondes générées par interférences constructives

La réponse fréquentielle est donnée par :

$$|\Phi^\pm(f)| = N \left| \frac{\sin X}{X} \right| \quad \text{avec} \quad X = N_f \pi \frac{f-f_0}{f_0} \quad (II.5)$$

où f_0 est la fréquence centrale et N le nombre de paires de doigts ($N = N_f/2$). Sur la Figure II.5 est représenté le potentiel de l'onde en fonction du paramètre X . Lorsque X est un multiple de π , le potentiel Φ est nul, résultat de l'annulation totale entre les contributions des doigts. Par conséquent, l'intervalle de fréquence B , appelé aussi bande passante, entre les deux premiers potentiels nuls de chaque côté de f_0 est :

$$B = \frac{2}{N} \quad (II.6)$$

On peut noter que la bande passante est inversement proportionnelle au nombre de doigts de l'IdT.

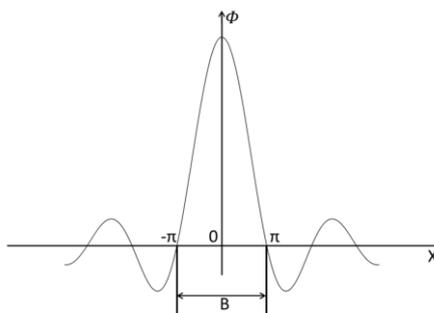


Figure II.5 : Réponse fréquentielle d'un transducteur de type $\sin(X)/X$

II.A.3.2. Déviations des ondes élastiques dues aux effets du second ordre

Plusieurs effets secondaires perturbent le fonctionnement des électrodes et, par conséquent, dégradent la réponse fréquentielle des dispositifs à ondes élastiques de surface. Parmi ceux-ci, nous pouvons citer [1] [17]:

- Le couplage électromagnétique : il correspond au couplage direct du signal d'entrée de l'IdT émetteur au récepteur sous forme de rayonnement électromagnétique. Les deux électrodes se comportent comme des capacités et agissent telles que des antennes. Le récepteur capte une fraction de la tension électrique appliquée à l'émetteur.
- La diffraction : le faisceau des ondes élastiques de surface s'élargit avec la distance à l'IdT émetteur. La longueur de recouvrement de l'électrode réceptrice doit être plusieurs fois plus grande que la longueur d'onde afin de capter une plus grande partie du faisceau. Cet effet peut être partiellement compensé avec l'anisotropie du substrat piézoélectrique.
- Les réflexions : lorsqu'une onde élastique de surface rencontre une électrode métallique, des réflexions ont lieu. En effet, les doigts des électrodes réalisés sur un substrat piézoélectrique induisent une variation de l'impédance électrique et mécanique. Ces dernières induisent des distorsions de la conductance de rayonnement de l'IdT pour des épaisseurs du métal tel que $\frac{h}{\lambda} > 1\%$ avec h l'épaisseur du film métallique.
- Des ondes de volumes : les électrodes peuvent aussi générer des ondes de volume. La vitesse de ces ondes est supérieure à celle des ondes de surface. Ainsi, la bande de fréquence correspondant à l'excitation de ces ondes de volume est située au-delà de la fréquence de résonance.
- Les interférences de triple transit (Triple Transit Interference TTI) : celles-ci sont principalement dues aux multiples réflexions des ondes élastiques de surface entre les deux électrodes. Le signal de sortie est affecté par des signaux supplémentaires dus à ces interférences multiples.

II.A.3.3. Type de transducteurs

II.A.3.3.1. Les transducteurs bidirectionnels

Les électrodes « standard » générant des ondes élastiques de surface sont des transducteurs dits bidirectionnels. Les doigts formant l'électrode sont espacés de la moitié de la longueur d'onde ($\lambda/2$) qui correspond à la fréquence de résonance (Figure II.6). Lors de l'excitation de l'électrode, la moitié de l'énergie de l'onde est émise d'un côté du transducteur et la seconde moitié de l'autre côté induisant une perte de 3dB due à la bidirectionnalité. Pour éviter ces pertes, d'autres types de transducteurs ont été développés.

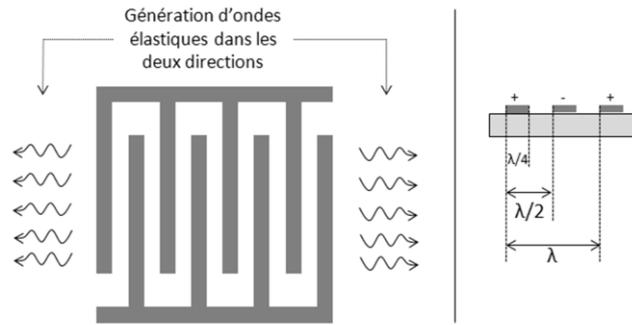


Figure II.6 : Transducteur bidirectionnel

II.A.3.3.2. Les transducteurs unidirectionnels

On trouve différents designs de transducteur permettant d'éviter les pertes dues à la bidirectionnalité des électrodes [17] [20]. On les appelle des transducteurs unidirectionnels (SPUDT : Single Phase UniDirectionnal Transducer). Le principe est d'introduire des électrodes passives entre les doigts principaux du transducteur ou à créer des dissymétries dans la structure ce qui favorise la génération de l'onde dans le sens voulu. Les dissymétries sont introduites sous forme de réflecteurs internes, électrodes passives ou scission d'électrodes. Un exemple de transducteur unidirectionnel est présenté à la Figure II.7. Il s'agit de SPUDT de type EWC (Electrode Width Controlled). On remarque l'ajout d'électrodes intermédiaires, par rapport aux transducteurs bidirectionnels, permettant d'orienter la génération des ondes élastiques de surface dans un sens précis. Il existe d'autres designs comme les transducteurs DART (Distributed Array Reflexion Transducer), Hanma, Dithered ou encore FEUDT (Floating Electrode UniDirectionnal Transducer) présentant tous des performances comparables [20].

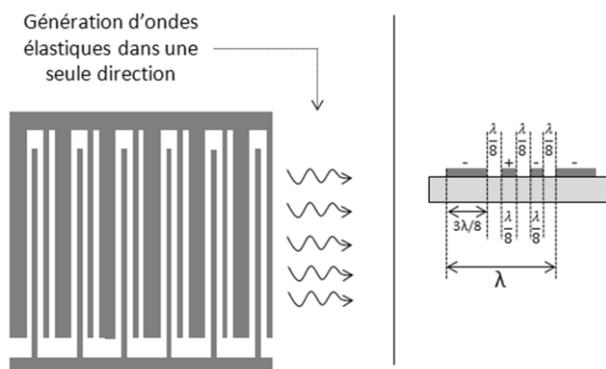


Figure II.7 : Transducteur unidirectionnel de type EWC

II.A.3.4. Principaux paramètres des matériaux piézoélectriques

En plus de la vitesse de propagation des ondes élastiques de surface, le matériau piézoélectrique est choisi en se basant sur plusieurs paramètres essentiels pour la génération des SAW. Pour cette étude, nous nous intéresserons à :

- La coupe cristallographique. En fonction de celle-ci, le matériau piézoélectrique permet de générer différents types d'ondes élastiques. Plusieurs matériaux peuvent générer des ondes de Rayleigh : le quartz de coupe ST et de direction de propagation X (ST-X), le niobate de lithium de coupe 128°Y et de direction de propagation X (128°Y-X LiNbO₃) ou de coupe Y de direction de propagation Z (Y-Z LiNbO₃) et bien d'autres [1] [2].
- Le coefficient de couplage électromécanique K². Celui-ci indique l'efficacité du matériau piézoélectrique à transformer l'énergie électrique en énergie mécanique et vice versa. Les trois matériaux présentés précédemment (quartz ST-X, 128°Y-X LiNbO₃ et Y-Z LiNbO₃) ont respectivement des coefficients de couplage de l'onde de Rayleigh de 0,11% 5,3% et 4,5%. Différentes solutions peuvent être utilisées pour déterminer ce coefficient :
 - Par la méthode des vitesses de phase :

$$K^2 = 2 \left(\frac{V_0 - V_m}{V_0} \right) \quad (II.7)$$

où V_0 et V_m sont les vitesses de phase des ondes élastiques de surface mesurées sur une surface libre et sur une surface métallisée respectivement.

- Par la méthode des fréquences de résonance et d'antirésonance [17]:

$$K^2 = \frac{\pi f_r}{2 f_a} \tan \left(\frac{\pi f_a - f_r}{2 f_a} \right) \quad (II.8)$$

avec f_r la fréquence de résonance et f_a la fréquence d'antirésonance.

- Par la méthode des conductance et susceptance [21]:

$$K^2 = \frac{\pi G(f_0)}{4N B(f_0)} \quad (II.9)$$

où N est le nombre de paires de doigts, $G(f_0)$ et $B(f_0)$ sont respectivement la conductance et la susceptance.

Concernant notre application, nous désirons tout d'abord générer des ondes de surface de type Rayleigh. Ensuite, nous souhaitons que les ondes se propagent avec de très faibles pertes pour qu'elles puissent interagir avec des gouttes posées n'importe où sur le substrat. Pour cela, l'utilisation d'un monocristal est intéressante puisque contrairement aux

substrats polycristallins, les pertes viscoélastiques sont faibles. Enfin, le matériau doit avoir un coefficient de couplage élevé. Plus ce coefficient est important, plus les ondes élastiques de surface générées posséderont d'énergie pour ensuite interagir avec les gouttes. Notre choix s'est donc orienté vers un substrat monocristallin de Niobate de lithium de coupe $128^\circ Y$ et de direction de propagation suivant l'axe X ($128^\circ Y-X$) avec un bon coefficient de couplage électromécanique (5,3%). De plus, cette coupe permet d'interagir et de déplacer des gouttes en deux dimensions. En effet, la direction perpendiculaire à l'axe cristallographique X possède aussi un bon coefficient de couplage électromécanique de l'ordre de 2%. Il a été montré que la puissance minimale nécessaire à l'actionnement de goutte est comparable selon les deux directions [22]. Ce substrat est donc un choix intéressant pour la réalisation future d'un laboratoire sur puce et est très utilisé dans des applications microfluidiques [22] [23] [24] [25] [26] [27]. Nous avons ainsi mené notre étude avec ce type de matériau.

II.A.4. Applications des dispositifs à ondes élastiques de surface

Les premières applications des dispositifs à ondes élastiques de surface ont concerné la réalisation de filtres fréquentiels passe bandes. Le premier à avoir vu le jour date de 1971 avec un filtre fonctionnant à 33MHz pour une application dans le domaine télévisuel [28]. Depuis, ces dispositifs ont connu un grand développement dans le domaine des télécommunications : télévision, radar, communications mobiles...Un des grands défis des dernières décennies est la course aux hautes fréquences qui pousse les équipes de recherche à déterminer de nouvelles techniques, de nouveaux matériaux pour atteindre des fréquences toujours plus hautes. Ainsi, ont vu le jour de nouveaux procédés microtechnologiques et nanotechnologiques et leur développement est continu. Notons aussi l'évolution et l'utilisation de matériaux tels que le diamant, le nitrure d'aluminium, l'oxyde de zinc ou les langasites pourvus de propriétés physiques et chimiques différentes des matériaux piézoélectriques « classiques » comme la vitesse de propagation des ondes élastiques élevée dans le cas du diamant.

Ces dispositifs ont ensuite connu un développement incontestable dans le domaine des capteurs permettant de s'affranchir des limites des capteurs traditionnels. Ces capteurs ont la possibilité d'être interrogés à distance par radiofréquence (sans fil) et en continu. De plus, ils ne requièrent ni batterie ni aucune source d'énergie permettant de les rendre totalement passifs avec une autonomie illimitée. Ils couvrent une large gamme de mesures et ne nécessitent ni recalibration ni maintenance limitant ainsi l'impact sur l'environnement (pas de batterie, de produits chimiques, de produit d'entretien comme de l'huile ou autre) dans le cas des capteurs de pression ou de température. La taille de ces capteurs à ondes élastiques est de l'ordre du cm^2 voire mm^2 . Ils peuvent être placés en environnements difficiles (champs électromagnétiques, hautes températures) ou intégrés directement dans des matériaux. Ils permettent de procéder à des mesures de température, de pression, de déformation en milieu hostile comme dans des machines tournantes ou à hautes températures élargissant ainsi les champs d'applications des capteurs.

La technologie SAW est aujourd'hui utilisée pour des applications dans le domaine de la microfluidique. En fonction du type d'onde générée, certaines peuvent se propager à la surface du matériau piézoélectrique en présence de liquide comme les ondes de Love. Des capteurs fluidiques ont ainsi été élaborés basés sur de ce type d'onde élastique [29] [30] [31]. En revanche, d'autres ondes, en particulier celle de Rayleigh interagissent avec des liquide permettant de nombreuses actions fluidiques élémentaires, comme le déplacement de goutte par exemple (I.C.2.2.2.4).

II.B. Couplage des ondes élastiques avec un liquide

II.B.1. Introduction

La propagation des ondes élastiques de surface n'est pas forcément affectée par les liquides. Il faut savoir que certains types d'onde, polarisées horizontalement comme par exemple les ondes de Love, se propagent à l'interface solide/liquide sans pertes dues au liquide (idéalement). D'autres, par contre, comme celles de Rayleigh, sont très atténuées après un faible trajet à l'interface solide/liquide. Celles-ci se couplent avec les liquides et sont à la base de plusieurs phénomènes très divers. L'énergie véhiculée par l'onde élastique de surface est dissipée dans le liquide sous forme d'ondes longitudinales ce qui induit, à faible puissance, un mélange interne à la goutte. Ce phénomène est connu sous le nom d' « acoustic streaming » littéralement écoulement acoustique [32]. A plus forte puissance ont été observés d'autres phénomènes tels que le déplacement de liquide sous forme de goutte, l'échauffement du liquide et enfin plus récemment l'atomisation ou la nébulisation du liquide.

Afin de comprendre comment l'atténuation de l'onde élastique de Rayleigh à l'interface solide/liquide est à l'origine de ces phénomènes, nous devons d'abord appréhender le phénomène d' « acoustic streaming » [33] [34]. Ensuite, nous décrirons le couplage entre les ondes de type Rayleigh et les liquides.

II.B.2. L'acoustic streaming

On appelle « acoustic streaming » le déplacement ou l'écoulement de fluide par une onde acoustique de haute intensité. La théorie de l' « acoustic streaming » a d'abord été élaborée par Nyborg *et al.* en 1965 [33]. Plus tard, en 1995, Uchida *et al.* établirent la théorie de l' « acoustic streaming excited by SAW » [32] et réalisèrent quelques expériences riches d'enseignement. Rayleigh et Stokes ont discuté bien avant de l'adsorption des ondes élastiques dans les fluides. Nous pouvons trouver les théories dans les traités classiques [35]. Langevin a étudié le cas particulier des ultrasons dans un cours au collège de France en 1923 dont P.Biquard a donné un résumé dans la Revue d'Acoustique [36]. Citons aussi le livre de Marinesco [37] qui a repris et exploité les théories de Langevin.

II.B.2.1. Equations de base

Depuis les analyses théoriques de Rayleigh, de nombreux travaux expérimentaux ont vu le jour afin d'approfondir ce sujet. Il est aujourd'hui établi qu'une source acoustique sinusoïdale impose au fluide un champ de vitesses qui n'est pas simplement sinusoïdal [27]. L' « acoustic streaming » est l'écoulement défini par la valeur moyenne du flux d'énergie acoustique. Ce dernier est issu d'un phénomène de dissipation acoustique créant un gradient de forces qui entraîne un mouvement indépendant du temps.

Une onde acoustique est générée par la vibration d'un matériau. Elle est transmise grâce à l'élasticité de ce matériau qui lui permet de se propager sous forme d'onde. Celle-ci peut être décrite comme une perturbation mécanique qui modifie localement les propriétés du milieu dans lequel elle se propage. On privilégie souvent la description d'un fluide en termes de pression, de masse volumique et de vitesse. En notant p_0 et ρ_0 respectivement la pression et la masse volumique d'un fluide à l'état d'équilibre, on peut définir l'onde acoustique en chaque point $M(x,y,z,t)$ d'un repère simple (x,y,z) à chaque instant t par les champs de pression, de masse volumique et de vitesse par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} p_{totale}(x, y, z, t) &= p_0 + p(x, y, z, t) && \text{avec } \langle p \rangle = 0 \\ \rho_{totale}(x, y, z, t) &= \rho_0 + \rho(x, y, z, t) && \text{avec } \langle \rho \rangle = 0 \\ \vec{v}_{totale}(x, y, z, t) &= \vec{v}(x, y, z, t) && \text{avec } \langle \vec{v} \rangle = 0 \end{aligned} \quad (II.10)$$

La notation $\langle \rangle$ désigne la valeur moyenne temporelle. Dans la description de l'onde acoustique, on se limite souvent à des calculs à l'ordre 1 ce qui constitue une approximation dont il faut vérifier la validité. Cette approximation, appelée approximation acoustique, permet d'écrire des équations linéaires et de faciliter les calculs. Dans le cas de la propagation d'onde acoustique et de l'approximation linéaire, un transfert d'énergie est réalisé sans génération de force dans le fluide. Or, cette approximation acoustique devient obsolète lorsque l'on considère des ondes acoustiques de fortes intensités. En effet les valeurs moyennes temporelles de pression, de masse volumique et de vitesse ne sont plus nulles et des termes du second ordre apparaissent. Dans ce cas, la propagation d'ondes élastiques dans un fluide induit une pression nommée pression de radiation acoustique. Cette force sera orientée selon la direction de propagation des ondes [27] [38].

Revenons aux équations de la dynamique des fluides et à l'équation de continuité vues au chapitre 1. Considérons un fluide homogène isotrope dans lequel la pression, la masse volumique et la vitesse sont données par $p(x, y, z, t)$, $\rho(x, y, z, t)$ et $\vec{v}(x, y, z, t)$. Considérons un petit élément Υ du fluide soumis à des contraintes élastiques et visqueuses. La force \vec{F} par unité de volume due aux contraintes est la suivante :

$$\vec{F} = \rho \left[(\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} + \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right] = -\vec{\nabla} p + \mu \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \left(\mu' + \frac{\mu}{3} \right) \vec{\nabla}^2 \vec{v} \quad (II.11)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (II.12)$$

Ces équations sont très difficiles à résoudre sauf dans des cas bien précis et triviaux où, par exemple, la viscosité du fluide est supposée nulle [38]. Il faut donc réaliser des approximations en considérant les différentes grandeurs comme la somme d'une composante X_0 égale à la grandeur au repos, d'une composante du premier ordre X_1 variant de manière sinusoïdale en

fonction du temps et d'une composante du second ordre X_2 liée aux phénomènes non linéaires de l'écoulement indépendant du temps avec X la grandeur à considérer:

$$\begin{aligned} p_{total} &= p_0 + p_1 + p_2 \\ \rho_{total} &= \rho_0 + \rho_1 + \rho_2 \\ \vec{v}_{total} &= \vec{v}_1 + \vec{v}_2 \end{aligned} \quad (II.13)$$

Par souci de lisibilité, nous avons supprimé les indices cartésiens. A l'aide de ces expressions, nous pouvons modifier l'équation (II.11) pour obtenir une équation au sens temporel. En effet, en prenant la moyenne par rapport au temps, nous faisons seulement apparaître les termes indépendants du temps [33] [39]:

$$\langle \vec{F} \rangle = \rho_0 \langle (\vec{v}_1 \cdot \vec{\nabla}) \vec{v}_1 + \vec{v}_1 (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}_1) \rangle = -\vec{\nabla} p_2 + \mu \vec{\nabla}^2 \vec{v}_2 + \left(\mu' + \frac{\mu}{3} \right) \vec{\nabla}^2 \vec{v}_2 \quad (II.14)$$

Voyons, comme exemple, le cas d'une onde plane se propageant dans un fluide.

II.B.2.2. Propagation d'une onde plane dans un fluide

Soit une membrane plane immergée dans un fluide représentée à la Figure II.8. Au repos, la pression dans le fluide est uniformément répartie et égale à p_0 . Lorsque la membrane est animée d'un mouvement qui comprime la couche OA, cette couche comprime et détend celle voisine pour retrouver sa position d'équilibre. Se crée et se propage alors dans le fluide une onde progressive dans la direction des x positifs. Lors du passage de l'onde, les différentes tranches successives du fluide se mettent en mouvement. Considérons l'une d'entre elle de surface S et d'épaisseur dx délimitée par les limites I et J respectivement en x et $x + dx$ au

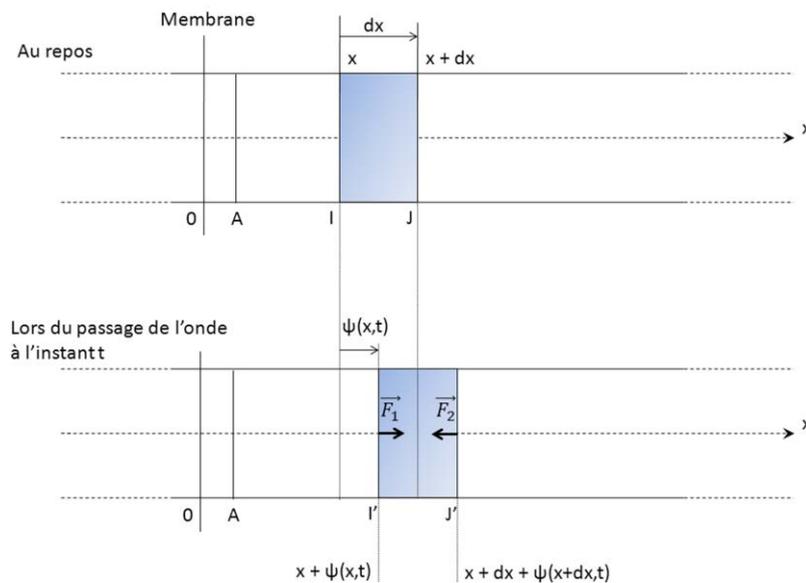


Figure II.8 : Une membrane plongée dans un fluide et animée d'un mouvement suivant l'axe x . Une onde longitudinale se crée et se propage.

repos. Nous noterons $u(x, t)$ la vitesse du déplacement de la tranche d'abscisse x à l'instant t et $p(x, t)$ la pression acoustique liée au passage de l'onde en x à l'instant t . La pression totale s'écrira $p(x, t) = p_0 + \delta p(x, t)$. On se limitera aux mouvements de faible amplitude : la vitesse $u(x, t)$, la pression acoustique $p(x, t)$ et leurs dérivées peuvent être considérés comme des infiniments petits du premier ordre.

A l'instant t , lorsque l'onde traverse la tranche, les points I et J sont animés d'un mouvement et se déplacent en I' et J' d'abscisses respectives $x + \psi(x, t)$ et $x + dx + \psi(x + dx, t)$ (Figure II.8). D'après la loi fondamentale de la dynamique :

$$dm\vec{a} = \vec{F}_1 + \vec{F}_2 \quad (II.15)$$

Par projection sur l'axe x , il vient

$$dma_x = F_1 - F_2 \quad (II.16)$$

Le plan I d'abscisse x au repos est à l'abscisse $x + \psi(x, t)$ à l'instant t et à l'abscisse $x + \psi(x, t + dt)$ à l'instant $t + dt$. La vitesse acoustique est donc de la forme suivante :

$$v_x = \frac{(x + \psi(x, t + dt)) - (x + \psi(x, t))}{dt} = \frac{\psi(x, t + dt) - \psi(x, t)}{dt} = \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} \quad (II.17)$$

En dérivant la vitesse, l'accélération s'écrit :

$$a_x = \frac{\partial^2 \psi(x, t)}{\partial t^2} \quad (II.18)$$

Avec la conservation de la masse de la tranche du fluide, la masse dm de celle-ci est la suivante :

$$dm = S \cdot \rho_0 \cdot dx \quad (II.19)$$

La somme F des forces projetées sur l'axe x qui s'exerce sur la couche de fluide est la suivante :

$$F = F_1 - F_2 \quad (II.20)$$

$$F = S[p(x + \psi(x, t), t) - p(x + dx + \psi(x + dx, t), t)] \quad (II.21)$$

L'expression de F est de la forme $-S \cdot d(p(x + \psi(x, t), t))$. Sachant dans ce cas que

$$dp(x + \psi(x, t), t) = \left(\frac{\partial p(x + \psi(x, t), t)}{\partial x} \right) dx \quad (II.22)$$

Il vient alors :

$$F = -S. dx. \frac{\partial p(x + \psi(x, t), t)}{\partial x} \quad (\text{II.23})$$

Sachant que $\psi(x, t) \ll x$, nous pouvons développer au premier ordre l'expression de la pression :

$$p(x + \psi(x, t), t) \approx p(x, t) + \psi(x, t) \frac{\partial p(x, t)}{\partial x} \quad (\text{II.24})$$

Nous obtenons ainsi :

$$\frac{\partial p(x + \psi(x, t), t)}{\partial x} \approx \frac{\partial p(x, t)}{\partial x} + \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial x} \frac{\partial p(x, t)}{\partial x} + \psi(x, t) \frac{\partial^2 p(x, t)}{\partial x^2} \quad (\text{II.25})$$

La surpression acoustique $p(x, t)$ étant considérée comme un infiniment petit du premier ordre, nous pouvons négliger le dernier terme (second ordre). D'après la loi fondamentale de la dynamique et d'après les équations (II.18), (II.19), (II.23) et (II.25) :

$$\rho_0. S. dx \frac{\partial^2 \psi(x, t)}{\partial t^2} = -S. dx \left(\frac{\partial p(x, t)}{\partial x} + \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial x} \frac{\partial p(x, t)}{\partial x} \right) \quad (\text{II.26})$$

On en déduit l'expression suivante :

$$\rho_0 \frac{\partial^2 \psi(x, t)}{\partial t^2} = - \frac{\partial p(x, t)}{\partial x} \left(1 + \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial x} \right) \quad (\text{II.27})$$

En appliquant l'hypothèse des petits déplacements, c'est-à-dire $\frac{\partial \psi(x, t)}{\partial x} \ll 1$, et en remplaçant la pression par son expression $p(x, t) = p_0 + \delta p(x, t)$, l'équation devient

$$\rho_0 \frac{\partial^2 \psi(x, t)}{\partial t^2} = - \frac{\partial (\delta p(x, t))}{\partial x} \quad (\text{II.28})$$

Le fluide dans lequel se propage l'onde n'étant pas parfait, il ne répond pas instantanément à toutes sollicitations. Fixons R une constante décrivant un processus de relaxation lors de la compression et de la détente du fluide. L'excès de pression δp peut s'écrire selon l'équation suivante [33]:

$$\delta p = c_l^2 \rho_l + R \frac{\partial \rho_l}{\partial t} \quad (\text{II.29})$$

avec c_l la vitesse des ondes de compression dans le liquide. En reportant cette dernière équation dans (II.28) et en appliquant l'équation de la continuité (II.12), on obtient :

$$\frac{\partial^2 \psi(x, t)}{\partial t^2} = c_l^2 \frac{\partial^2 \psi(x, t)}{\partial x^2} + R \frac{\partial^2}{\partial x^2} \left(\frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} \right) \quad (\text{II.30})$$

Cette dernière équation admet comme solution $\psi(x, t) = \psi_0 e^{-\alpha x} e^{j(\omega t - kx)}$ avec $\alpha = \frac{\omega}{c_l}$. En reportant cette expression du déplacement dans l'équation (II.30), le coefficient de dissipation α de l'onde est de la forme suivante :

$$\alpha^2 = \frac{\omega^2}{2c_l^2} \left(\frac{1}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2}} - \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \right) \quad (\text{II.31})$$

$$\tau = \frac{R}{c_l^2}$$

Par conséquent, la force engendrée par cette relaxation donne, d'après l'équation au sens temporel (II.14) :

$$\begin{aligned} \langle F \rangle &= 2\rho_l \left\langle \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} \frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial \psi(x, t)}{\partial t} \right\rangle \\ \langle F \rangle &= 2\alpha\rho_l (\psi_0 \omega e^{-\alpha x})^2 \langle \sin^2(\omega t - kx) \rangle \\ \langle F \rangle &= \alpha\rho_l (\psi_0 \omega e^{-\alpha x})^2 \end{aligned} \quad (\text{II.32})$$

On remarque ici que le processus de relaxation (ou de détente) engendre une atténuation de l'onde. La dissipation de l'énergie acoustique lors de la propagation de l'onde crée une force indépendante du temps. Les phénomènes entraînant la perte d'énergie de l'onde peuvent être liés aux dissipations par viscosité ou par perte de chaleur.

II.B.2.3. Rayonnement d'une onde élastique de surface dans un liquide

Considérons une onde élastique de surface se propageant à la surface d'un solide selon l'axe des x sans pertes (nous discuterons cette hypothèse plus tard). La vitesse de propagation dans le solide est c_s et la pulsation de l'onde est ω . Dû aux caractéristiques de l'onde de Rayleigh, le mouvement d'une particule à la surface du solide peut se décomposer en une composante normale à la surface et une composante parallèle au déplacement. Lorsque l'onde atteint l'interface liquide/solide, un phénomène de rayonnement se produit induisant un écoulement dans le liquide [32]. La différence de densité entre le solide et le liquide induit une onde longitudinale (appelée aussi une onde de compression) dans le liquide de longueur

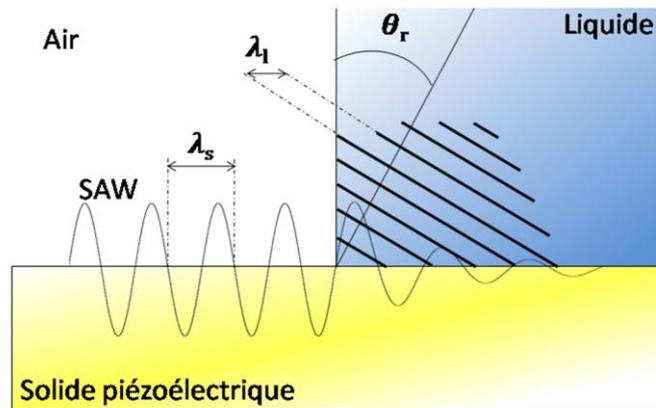


Figure II.9 : Interaction d'une onde élastique de surface avec un liquide. Celle-ci, à l'interface solide/liquide, cède son énergie au liquide sous la forme d'une onde longitudinale de compression suivant l'angle de Rayleigh θ_r .

d'onde λ_l causée par la composante normale de l'onde de Rayleigh. La Figure II.9 présente ce comportement. L'onde de compression rayonnée dans le liquide l'est avec une direction donnée par l'angle de Rayleigh θ_r défini par l'équation suivante:

$$\theta_r = \sin^{-1} \left(\frac{c_l}{c_s} \right) \quad (\text{II.33})$$

avec c_l la vitesse de propagation de l'onde dans le liquide. Cette formule peut être retrouvée aisément en appliquant la loi de Snell-Descartes représentée à la Figure II.10 et par l'équation suivante:

$$\frac{\sin \theta_1}{v_1} = \frac{\sin \theta_2}{v_2} \quad (\text{II.34})$$

Sur la Figure II.10 et dans (II.34), θ_1 vaut $\pi/2$ donc $\sin \theta_1 = 1$. Ainsi, $\sin \theta_2 = \frac{v_2}{v_1}$ ce qui revient à (II.33) avec $\theta_2 = \theta_r$, $v_1 = c_s$ et $v_2 = c_l$.

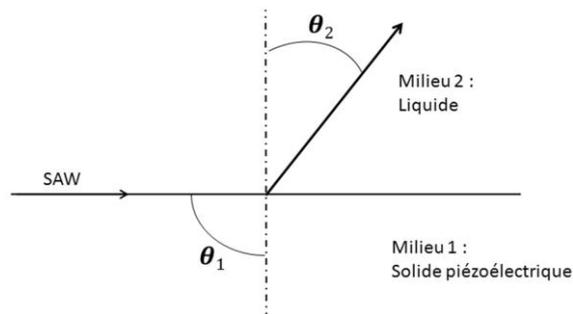


Figure II.10 : Schéma illustrant la loi de Snell-Descartes

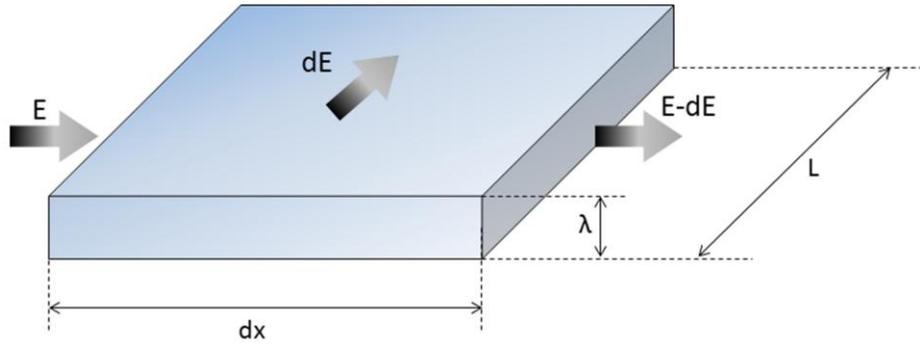


Figure II.11 : Les différents flux d'énergie à travers un élément de surface du solide piézoélectrique décrivant l'atténuation de l'onde élastique de surface par radiation dans le fluide.

Le rayonnement de l'onde de compression dans le liquide induit une forte atténuation des ondes élastiques de surface incidentes se propageant à la surface du solide piézoélectrique. Considérons un élément, de volume de longueur dx , de largeur L et de profondeur égale à la longueur d'onde SAW $\lambda_s = 2\pi c_s/\omega$ traversée par une onde de surface d'amplitude a_0 . L'énergie véhiculée par cette onde est notée E et l'énergie rayonnée dans le fluide sous forme d'onde longitudinale est dE (Figure II.11). L'énergie E véhiculée à travers la surface de largeur L et de profondeur λ s'exprime comme suit :

$$E = L\lambda I \quad (II.35)$$

avec $\lambda = \lambda_s$ et I , l'intensité acoustique :

$$I = \frac{1}{2} \frac{P_0^2}{c_s \rho_s} \quad (II.36)$$

Et P_0 l'amplitude de la pression acoustique de l'onde:

$$P_0 = 2\pi a_0 \frac{\rho_s c_s^2}{\lambda_s} \quad (II.37)$$

En remplaçant (II.37) et (II.36) dans (II.35), on obtient :

$$E = 2\pi^2 L \rho_s c_s^3 \frac{a_0^2}{\lambda_s} \quad (II.38)$$

De la même manière, l'énergie dE rayonnée à travers la surface ($L \cdot dx$) par seconde est exprimée par l'équation suivante :

$$dE = 2\pi^2 (L \cdot dx) \rho_L c_L^3 \left(\frac{a_0}{\lambda_s}\right)^2 = 2\pi^2 (L \cdot dx) \rho_L c_L c_s^2 \left(\frac{a_0}{\lambda}\right)^2 \quad (II.39)$$

Le coefficient d'absorption de l'onde est défini par le rapport entre l'énergie émise par unité de longueur dans le liquide sous forme d'onde de compression longitudinale par l'énergie de l'onde élastique de surface incidente. Nous obtenons donc :

$$\alpha_L = \frac{dE}{Edx} = \frac{1}{\lambda} \frac{\rho_L c_L}{\rho_s c_s} \quad (II.40)$$

α_L^{-1} correspond à la distance à laquelle 63% de l'énergie est transmise au liquide ($1 - e^{-1}$). Ainsi, 95% de l'énergie est transmise au liquide après un trajet à l'interface solide/liquide de $3 \cdot \alpha_L^{-1}$.

Pour une onde de Rayleigh de longueur d'onde $\lambda = 200\mu m$, se propageant à la surface d'un substrat piézoélectrique de niobate de lithium de coupe $\Upsilon+128^\circ$ et de direction de propagation X ($\rho_s = 4600kg.m^{-3}$ et $c_s = 3992m.s^{-1}$), le coefficient d'absorption lié à l'émission d'une onde longitudinale dans l'eau ($\rho_L = 1000kg.m^{-3}$ et $c_L = 1500m.s^{-1}$) vaut $\alpha_{L_{eau}} = 408m^{-1}$. Dans ces conditions, 95% de l'énergie de l'onde élastique de surface est transmise au liquide après une distance de propagation de 7,34mm soit environ 37 longueurs d'onde. Pour l'air, cette distance est 6,75m soit 135 000 longueurs d'onde. On peut donc considérer que la propagation d'ondes élastiques de surface sur ce type de substrat s'effectue sans pertes à l'interface solide/air. Pour le glycérol, ce coefficient vaut $\alpha_{L_{glycérol}} = 617m^{-1}$ avec $\rho_L = 1260kg.m^{-3}$ et $c_L = 1800m.s^{-1}$. Ainsi, 95% de l'énergie de l'onde est cédée au liquide après un parcours à l'interface solide/glycérol de 4,8mm. Notons que le glycérol est quasiment mille fois plus visqueux que l'eau à température ambiante.

Un autre phénomène de dissipation de l'énergie de l'onde élastique de surface apparaît lors de la propagation à l'interface solide/fluide. Celui-ci provient du frottement visqueux des particules en déplacement dans le fluide. Le coefficient d'atténuation α_T traduisant le frottement visqueux d'une onde de Rayleigh avec le fluide environnant est présenté à l'équation suivante :

$$\alpha_T = \frac{\sqrt{\frac{\rho_L \mu \omega^3}{2}}}{4\pi^2 \rho_s c_s^2} \quad (II.41)$$

Cependant, ce terme est négligeable pour des fluides de faible viscosité comme l'eau ou l'air. Avec les mêmes conditions expérimentales que citées précédemment, la fréquence de travail est 20MHz avec ce type de substrat, $\mu_{eau}(25^\circ C) = 0,89 mPa.s$ et $\alpha_{T_{eau}} = 0,32 m^{-1}$ ce qui représente moins de 0,1% de $\alpha_{L_{eau}}$. Dans le cas de liquide visqueux, tel que le glycérol, ce terme commence à devenir non négligeable. En effet, dans les même conditions, avec $\mu_{glycérol}(25^\circ C) = 934 mPa.s$, $\alpha_{T_{glycérol}} = 11,8 m^{-1}$, ce qui représente 1,9% de $\alpha_{L_{glycérol}}$.

L'onde de compression rayonnée dans le liquide est à l'origine du phénomène d'« acoustic streaming » et d'autres effets que nous présenterons plus tard. La quasi-totalité de l'énergie véhiculée par les ondes élastiques de surface de Rayleigh est transmise à la goutte sous forme d'onde longitudinale qui, elle aussi, s'atténue dans le liquide. Nous pouvons évaluer le coefficient d'absorption de celle-ci et est de la forme suivante [40]:

$$\alpha = \frac{R \omega^2}{2 c_L^3} \quad (II.42)$$

En considérant seulement les dissipations dues à la viscosité et aux pertes de chaleur, le coefficient R se présente tel que :

$$R = \frac{1}{\rho_L} \left(\frac{4}{3} \mu + \mu' + \frac{K}{C_p} (\gamma - 1) \right) \quad (II.43)$$

avec μ la viscosité dynamique, μ' la viscosité de volume, K la conductivité thermique du fluide, C_p la capacité calorifique à pression constante et γ étant le rapport C_p/C_v avec C_v la capacité calorifique à volume constant. Pour les fluides compressibles, γ est supérieur à 1 nous informant que $C_p > C_v$. Dans les prochains calculs, nous négligerons le terme lié aux pertes de chaleur car le rapport K/C_p ($1,4 \cdot 10^{-4}$) sera faible et le terme multiplicatif $(\gamma - 1)$ sera proche de 0. Ainsi, pour l'eau, $\mu' = 2,8\mu$ [41], $K = 0,6 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$, $C_p = 4182 J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$, le coefficient d'absorption à 20MHz vaut 8,6 ce qui signifie que 95% de l'énergie de l'onde de compression longitudinale est dissipée dans l'eau après un parcours de 34,8cm. Dans le cas du glycérol, ce coefficient s'élève à 2372 soit 95% de l'énergie de l'onde de compression longitudinale est atténuée après un parcours de seulement 1,2mm. Ainsi, nous voyons bien que l'atténuation des ondes de compression longitudinale est fortement influencée par la viscosité du milieu. Ces ondes de compression se propagent suivant l'angle de Rayleigh et sont responsables de la pression de radiation acoustique au sein de la goutte définie par l'équation suivante [42]:

$$P_s = \rho_0 c_s^2 \left(\frac{\Delta \rho}{\rho_0} \right)^2 \quad (II.44)$$

La pression de radiation acoustique conduit à la génération d'une force au sein du fluide et à l'instauration d'un écoulement et de plusieurs phénomènes que nous présenterons dans les parties suivantes.

II.B.3. Interactions entre les ondes élastiques de surface et une microgoutte

De nombreuses études sont publiées chaque année concernant l'interaction entre des ondes élastiques de surface et une microgoutte allant de quelques nanolitres à plusieurs dizaines de microlitres [22] [26] [27] [43] [44] [45] [46] [47]. A cette échelle, les effets de gravité sont négligeables vis-à-vis des effets capillaires. Les contours des gouttes peuvent donc être approximées par des arcs de cercle. Les premiers effets remarquables furent le déplacement et l'atomisation de goutte [43]. Ensuite se sont ajoutés le mélange interne à la goutte, l'échauffement de celle-ci et la vibration de la surface libre.

II.B.3.1. Déplacement de goutte

La première publication concernant l'interaction entre les ondes élastiques de surface de type Rayleigh avec une microgoutte date de la fin des années 1980 [43]. Or, ce ne fut que dix ans plus tard que cette technique a commencé à intéresser de nombreuses équipes de recherche. L'équipe de S. Shiokawa présente une première étude consacrée au déplacement de goutte ainsi qu'à la génération de gouttes induites par ondes élastiques de surface. L'onde est générée à la surface d'un substrat de Niobate de Lithium (LiNbO_3) de coupe $Y+128^\circ$ et de direction de propagation suivant l'axe X. La fréquence de fonctionnement est de 50MHz. Les auteurs remarquent qu'au-delà d'une certaine puissance acoustique, la goutte commence à bouger dans le sens de propagation des ondes élastiques. Il est aussi montré que l'état de surface modifie la puissance seuil nécessaire à l'actionnement de la goutte. Deux couches sont utilisées pour mettre en évidence ce phénomène : l'une hydrophile en aluminium et l'autre hydrophobe à base de silane. Cette deuxième couche a permis aux auteurs de mettre en évidence la possibilité de générer des gouttes et des nuages de gouttes. Le nom de cet effet est « atomisation de liquide » que nous verrons un plus tard.

Depuis, de nombreuses études ont vu le jour à propos du déplacement et de la localisation de gouttes et d'objets. Sano *et al.* [48], par exemple, ont proposé une technique permettant de mouvoir un petit objet posé sur une microgoutte de $0,5\mu\text{L}$. Brunet *et al.* [49] ont présenté des résultats de simulation et d'analyse expérimentale montrant que la pression de radiation acoustique et le streaming interviennent tous les deux dans le comportement de la goutte. Wu *et al.* [23] ont proposé un design d'électrodes, à base de « slanted IdT » (transducteur de forme trapézoïdale) capable à la fois de déplacer des gouttes et de détecter leurs positions. Plus récemment, Renaudin *et al.* [50] ont développé une plateforme pour le déplacement de gouttes en deux dimensions et une technique de localisation de gouttes [51] [52] (Figure II.12). Une impulsion est appliquée à l'électrode générant ainsi une onde élastique de surface (RFP_L sur la Figure II.12). Lorsqu'elle atteint la goutte, une partie de son énergie est retournée vers l'électrode (Echo Signal sur la Figure II.12). Connaissant la vitesse de propagation de l'onde élastique, il est possible de déterminer avec précision la position de la goutte. Baudoin *et al.* ont présenté une technique permettant de réduire la puissance nécessaire pour le déplacement de microgouttes [44]. En excitant les modes d'oscillations

inertio-capillaires de la microgoutte, il est possible de diviser par un facteur 3 la puissance minimum de déplacement des microgouttes.

De nombreux travaux ont ainsi traité cette problématique. En effet, pour des applications telles que des laboratoires sur puce, la maîtrise de cette fonction est fondamentale afin de mouvoir les microgouttes dans des zones précises. Généralement, les vitesses atteintes sont de l'ordre du cm.s^{-1} en fonction de la puissance acoustique, de la viscosité du liquide et de l'état de surface [22] [50]. On dénombre ainsi une multitude de publications et d'étude à propos du déplacement de goutte par onde élastique de surface, montrant ainsi l'intérêt de cette technologie pour des applications microfluidiques.

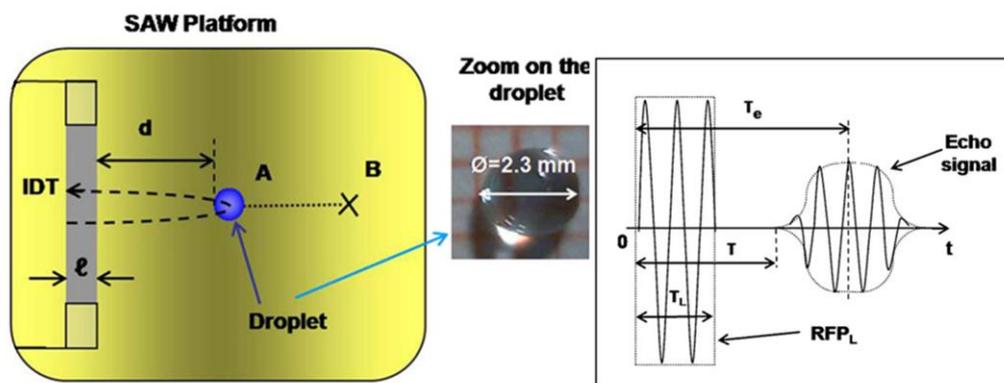


Figure II.12 : Dispositif de A. Renaudin pour le déplacement et la localisation de microgouttes [51]

II.B.3.2. Écoulement interne

Les premières expériences concernant l'« acoustic streaming », ou plutôt ici l'écoulement interne, datent de 1995 [32] où la vitesse de l'écoulement a été mesurée à l'aide de particules traçantes mélangées à de l'eau. Le dispositif SAW est fabriqué sur un substrat de Niobate de Lithium (LiNbO_3) de coupe $Y+128^\circ$ et de direction de propagation suivant l'axe X. La fréquence de fonctionnement est 50MHz. Jusqu'à des distances de 10mm, la vitesse d'écoulement est constante puis décroît au-delà de ce seuil. Il faut savoir que le dispositif est « plongé » dans la solution d'eau/particules considérée comme infinie devant la distance de propagation des ondes longitudinales de compression dans le fluide. Or, dans notre cas, les ondes longitudinales se propagent dans un volume clos limité par la surface libre de la goutte. L'ordre de grandeur du diamètre des gouttes utilisées est de l'ordre du millimètre. L'onde longitudinale interagit alors avec la surface libre de la goutte et différents phénomènes tels que la déformation de la surface libre de la goutte ou encore la réflexion des ondes longitudinales de compression sur la surface libre sont observés [45] [49].

Ce phénomène, tout autant fondamental que le déplacement de goutte, a été l'objet de nombreuses études. En effet, l'écoulement interne est une fonction importante pour des applications type laboratoire sur puce, afin de réaliser le mélange de réactif par exemple et ainsi améliorer l'efficacité de réactions biologiques et chimiques. A ces faibles échelles, sans apport d'énergie, le mélange de deux produits s'effectue seulement par diffusion et des temps très longs, de quelques minutes à plusieurs heures, sont nécessaires pour obtenir un mélange correct. A l'aide des ondes élastiques de surface, l'« acoustic streaming » permet des mélanges efficaces et très rapides en moins d'une seconde [42] [53]. Strobl *et al.* ont testé différents paramètres tels que la fréquence de l'onde élastique, la puissance électrique injectée à l'électrode que l'on appellera P_{idt} et le volume de la microgoutte [53]. Le substrat utilisé est le Niobate de Lithium de coupe $Y+128^\circ$ et de direction de propagation suivant l'axe X. Il en résulte que pour de faibles puissances ($31,6\mu W$), le mélange prend quelques minutes. Pour de plus grandes puissances, $446\mu W$, le mélange est réalisé après 70s et seulement $10\mu s$ sont nécessaires avec une puissance de 1W. La fréquence joue aussi un rôle important. Il est noté qu'il faut 2 fois plus de temps lorsque la fréquence initiale passe de 114MHz à 340MHz. Les essais à plus hautes fréquences (567MHz et 800MHz) ne provoquent pas de mélange significatif, probablement dû au fait de plus grandes pertes en propagation. Wixforth *et al.* [42] ont aussi observé ce mélange interne, présenté sur la Figure II.13 et mis en évidence le phénomène de pression de radiation acoustique. Les expériences sont réalisées avec une goutte d'eau de 50nl avec un colorant fluorescent posé à la surface du dispositif. Nous remarquons très bien la mise en mouvement du colorant ainsi que son homogénéisation au sein de la microgoutte. Pour compléter cette figure, nous pouvons souligner que l'écoulement au sein de la goutte s'effectue de manière symétrique. Deux vortex se forment (Figure II.15) au sein d'un écoulement laminaire.

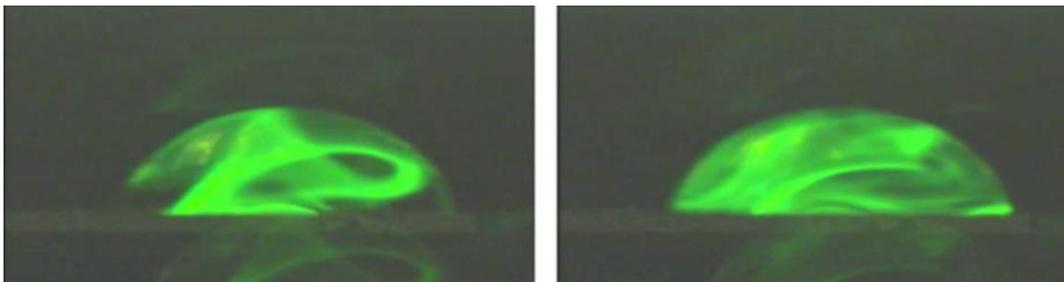


Figure II.13 : Mélange interne à la goutte d'eau de 50nL soumise à des ondes de Rayleigh. Un colorant fluorescent est utilisé pour mettre en évidence le phénomène

Plus récemment, les fortes capacités de ces dispositifs ont été couplées à d'autres systèmes microfluidiques. Le phénomène d'« acoustic streaming » est par exemple utilisé pour mélanger deux fluides insérés dans un microcanal par une jonction de forme « Y » et s'écoulant de manière laminaire [24] [54] [55] [56]. Sans l'aide de l'« acoustic streaming », le mélange s'effectue de manière diffusive et de grandes longueurs de canaux seraient nécessaires pour obtenir un mélange adéquat. A l'aide de dispositifs à ondes élastiques de surface, ces liquides sont rapidement mélangés évitant l'utilisation de dispositifs à grandes dimensions.

Les publications concernant ce phénomène sont très riches tant du point de vue théorique qu'expérimental. Il est très difficile de modéliser et simuler l'effet d'« acoustic streaming » mais certaines équipes de recherche ont montré qu'il était possible d'approcher ce comportement [26] [47] [57]. Celui-ci, très rapide, permet le mélange de différents réactifs et confirme la possibilité d'utiliser les dispositifs à ondes élastiques de surface comme outil microfluidique.

II.B.3.3. Echauffement

Le troisième effet observé est l'échauffement de la microgoutte. En effet, l'onde longitudinale cède son énergie lorsqu'elle se propage au sein du liquide. Une partie de cette énergie se dissipe sous forme de chaleur dans la microgoutte et permet de l'échauffer. Cet effet peut être très intéressant pour la réalisation de réactions biologiques et chimiques. En effet, beaucoup de réactions nécessitent une température constante et certaines peuvent être accélérées en augmentant simplement la température réactionnelle.

Peu d'études portent sur l'échauffement de goutte par ondes élastiques de surface. L'équipe de J. Kondoh et les travaux de D. Beyssen ont montré qu'il est possible d'atteindre des températures supérieures à 100°C en fonction de la viscosité du liquide ainsi que de la puissance acoustique [25] [22]. Les substrats utilisés sont le Niobate de Lithium de coupe Y+128 et de direction de propagation X. Le dispositif de J.Kondoh est excité à 48,6MHz tandis que celui de D.Beyssen l'est à 40MHz. La fréquence de ces deux études étant relativement proche, celle-ci ne joue pas de rôle significatif quant à l'échauffement de la microgoutte. Pour mesurer la température, J.Kondoh utilise un thermocouple ainsi qu'un thermomètre infrarouge et D.Beyssen moyenne 5 pixels d'images infrarouges de la microgoutte issues de l'enregistrement d'une caméra thermique. Une des images de la caméra infrarouge est présentée à la Figure II.15 [22]. On remarque très bien ici les deux vortex dus à l'écoulement interne présenté auparavant et où la température est la plus importante. On note aussi que la température n'est pas parfaitement uniforme ce qui peut poser des problèmes pour réaliser certaines réactions biologiques et chimiques. Les résultats des deux auteurs sont comparables. Logiquement, la température de la microgoutte s'élève lorsque la puissance P_{idt} augmente. La chaleur cédée est d'autant plus grande que la viscosité du liquide l'est aussi. Ainsi, les applications hautes températures nécessiteront des liquides de viscosité assez élevée. D.Beyssen présente par ailleurs que la température de la goutte ne dépend pas du volume de celle-ci pour des volumes compris entre 2 et 20 μ L. Les deux auteurs mettent en évidence la stabilité et la reproductibilité de la température de la goutte. Celle-ci est soumise plusieurs fois aux mêmes conditions expérimentales et les températures atteintes sont identiques. Pour finir, ils mettent en avant la possibilité de contrôler de manière périodique la température de la microgoutte ce qui ouvre des perspectives telles que le développement de thermocycleur pour des réactions de type PCR (Polymerase Chain Reaction).

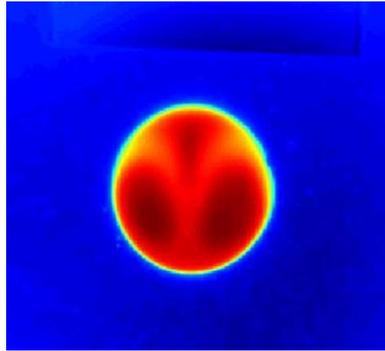


Figure II.15 : Echauffement d'une goutte soumise à des ondes élastiques de Rayleigh

La première application présentée dans la littérature est très récente. Il s'agit d'un système type bain marie présenté à la Figure II.14 par Zhang *et al.* [58] [59]. Le principe est d'irradier un conteneur en PDMS rempli de glycérol. Le conteneur capte alors les ondes élastiques de surface et s'échauffe. Un récipient, ici aussi fabriqué en PDMS et contenant les réactifs, est plongé dans le conteneur. Ce récipient est couvert de métal pour assurer un bon échange thermique. Les auteurs ont réussi à dissoudre de la paraffine solide dans du glycérol ce qui signifie que la température dans le récipient a dépassé celle de fusion de la paraffine qui se situe entre 58 et 60°C. Ce résultat est obtenu avec une puissance appliquée à l'IdT de 2W et après une durée de 90s. Pour diminuer les constantes de temps de chauffe, les auteurs proposent soit d'augmenter la puissance injectée soit de diminuer l'épaisseur de PDMS du récipient.

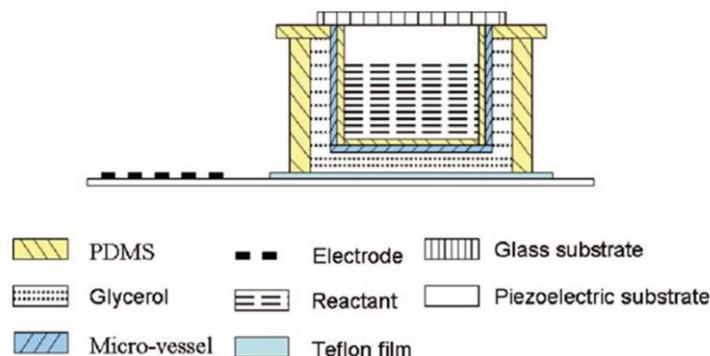


Figure II.14 : Système d'échauffement type bain marie [58] [59].

Cet échauffement par ondes élastiques de surface n'est toutefois pas toujours souhaité notamment pour certaines applications microfluidiques notamment avec des liquides contenant des réactifs biologiques. L'échauffement se manifeste avec des puissances plutôt élevées (>100mW). Il intervient donc simultanément aux fonctions basiques de mélange interne et de déplacement de microgouttes. Une technique a ainsi été mise en place pour éviter ce problème. Le principe n'est plus d'exciter en continu la microgoutte mais plutôt par impulsion d'ondes élastiques de surface, limitant de cette manière l'énergie dissipée dans la

goutte et donc l'échauffement [51]. Une autre solution pour éviter l'échauffement lors du déplacement de la goutte est d'utiliser la technique de Baudoin *et al.* en excitant les modes d'oscillations inertio-capillaires de la microgoutte [44].

II.B.3.4. Atomisation

Un dernier effet est observé avec des puissances acoustiques plus élevées de plusieurs watts. Comme nous l'avons mentionné précédemment, la première publication concernant l'interaction entre une onde élastique de Rayleigh et un liquide a mis en évidence la « génération de goutte » ou aujourd'hui communément appelée atomisation de liquide. Lorsque la pression acoustique est suffisante au sein du liquide, un jet de gouttelettes peut être créé dans la direction définie par l'angle de Rayleigh [43] (Figure II.16 a). Initialement, ce jet pouvait être utilisé pour la génération de petites gouttes comme le mentionnent les auteurs. Sous certaines conditions de puissance et de fréquence, il est possible de générer un « nuage » de gouttelettes et ainsi atomiser le liquide se trouvant sur le chemin de l'onde élastique de surface Figure II.16 b. C'est plutôt vers cette deuxième approche que se sont orientées de nombreuses équipes de recherche.

La possibilité d'atomiser un liquide en petites gouttelettes, de volume de l'ordre du picolitre jusqu'à la centaine de nanolitre, a permis le développement de systèmes médicaux et biologiques. Nous pouvons par exemple présenter une technique de génération d'agrégats de nanoparticules biodégradables en polymère dont la taille est comprise entre 150-200nm [60]. La technique consiste à exciter une onde de fréquence 8,611MHz et d'interagir avec un liquide contenant un solvant et des nanoparticules de polymère. Les agrégats générés sont composés de particules de 5 à 10nm générées par un phénomène de texturation lors de l'évaporation du solvant. Cette technique offre ainsi une approche simple pour générer efficacement de très petites nanoparticules biodégradables et biocompatibles appropriées pour une utilisation dans les systèmes d'administration de médicaments. De nombreuses publications portent sur l'atomisation [61] [62] [63] et particulièrement pour la délivrance de médicaments pulmonaires [64].

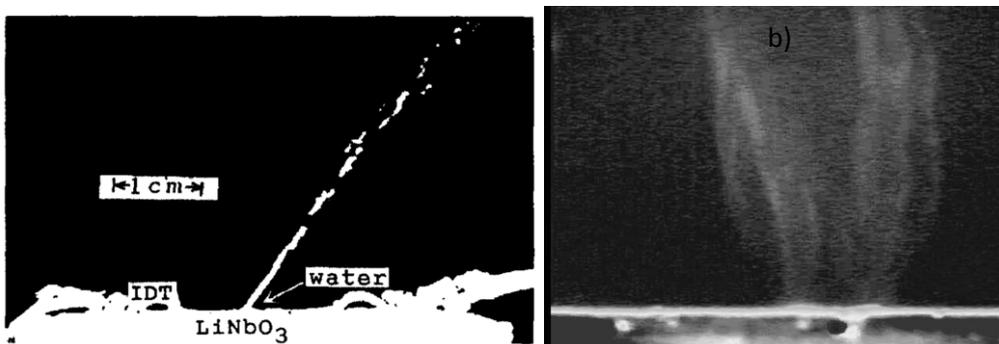


Figure II.16 : En a), génération d'un jet de gouttelettes [43] et en b), génération d'un nuage de très fines gouttelettes [75]

II.B.3.5. Vibration de la surface libre de la goutte

Comme nous l'avons cité auparavant, la pression de radiation acoustique engendre la vibration de la surface libre de la goutte. Ce phénomène a tout d'abord été étudié par les équipes de Yamakita et Miyamoto [65] [66]. Le dispositif est réalisé sur un substrat de Niobate de Lithium de coupe $Y+128^\circ$ et de direction de propagation suivant l'axe X. La fréquence de fonctionnement est ici de 50MHz. Deux IdTs symétriques sont excités simultanément par pulse de 500ms et une microgoutte est déposée entre ces deux électrodes. Lorsque la goutte est excitée par les ondes élastiques de surface, elle est soumise à une vibration forcée et lorsque l'onde est stoppée, la goutte vibre à une autre fréquence dite de vibration libre. La fréquence de vibration libre de la goutte n'est pas affectée par la tension appliquée aux électrodes alors que la fréquence de vibration forcée dépend fortement de cette tension. Cet effet permet par exemple de réduire la puissance nécessaire au déplacement de la goutte ainsi que l'échauffement de celle-ci [44] [45].

II.B.4. Intégration avec d'autres technologies

Depuis quelques années, on voit apparaître des études où ces dispositifs s'intègrent avec d'autres techniques microfluidiques. Comme nous l'avons cité, les dispositifs SAW s'associent très bien avec des puces à microfluidique continue pour, par exemple, améliorer le mélange de deux liquides. Nous pouvons aussi citer les travaux d'intégration entre des dispositifs microfluidiques diphasiques et ceux à ondes élastiques de surface [67]. En effet, l'utilisation des SAW peut s'avérer efficace pour diriger les gouttes indépendamment les unes des autres, pour les orienter vers d'autres microcanaux, ce qui est utile pour le tri des gouttelettes [68]. Les SAWs peuvent aussi être utiles au moment de la génération d'une émulsion. En effet, une étude a montré que l'uniformité de la taille des gouttes générées peut s'effectuer à l'aide d'onde élastique de surface et permet un contrôle électronique de la taille des gouttes en temps réel sans modifier les débits ou les dimensions des microcanaux [46] [69]. Récemment, plusieurs travaux intègrent les deux technologies microfluidiques EWOD et SAW [70] [71] [72] [73] [74]. Dans ces papiers sont discutés les avantages d'une technique par rapport à l'autre. Dans un premier temps, ce couplage permet un déplacement très précis grâce à la technique EWOD tandis que celle des SAW apporte un mélange des produits très efficace. Les auteurs remarquent ensuite la possibilité de diviser en deux une microgoutte. En effet, en fonction des matériaux utilisés et de la géométrie du dispositif, la séparation de gouttes n'est parfois pas possible par la méthode EWOD (Figure II.17 a,b et c). En générant une onde élastique de Rayleigh à un instant précis (Figure II.17 c), celle-ci permet la division de la goutte (Figure II.17 d).

La technologie SAW s'intègre ainsi très bien avec d'autres techniques microfluidiques. De nouveaux systèmes éclectiques voient le jour combinant les avantages de chaque méthode et affirmant la tendance à intégrer des opérations de plus en plus complexes et complètes sur une même puce.

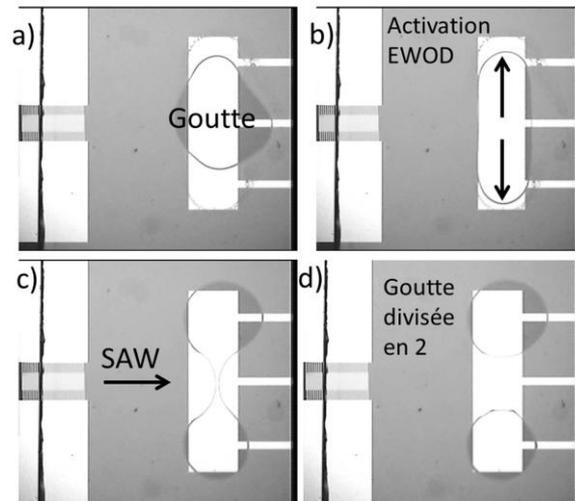


Figure II.17 : Séparation d'une goutte en deux par des techniques combinées EWOD et SAW [72]

II.C. Conclusion

Strobl et Wixforth [42] [53], qui collaborèrent sur de nombreux projets, ont été les premiers à avoir l'idée que les dispositifs à ondes élastiques de surface pouvaient être utilisés comme outils de travail pour des laboratoires sur puce ou des μ TAS. En cherchant à miniaturiser des opérations classiques issues de la biologie ou de la chimie, où chaque action est réalisée par un appareil dédié (mélange, échauffement, dilution,...), il a été montré que les dispositifs SAW peuvent permettre d'atteindre des dimensions de dispositifs en adéquation avec les laboratoires sur puce. Depuis, de nombreux travaux ont complété cette récente thématique et confirment le potentiel de ces dispositifs à s'intégrer comme outil microfluidique pour des applications médicales, biologiques et chimiques.

Dans ce mémoire, nous nous intéresserons principalement à la fonction d'échauffement issue de l'interaction entre une goutte et une onde élastique de Rayleigh. Nous observerons la répartition de la température au sein de la goutte et nous proposerons et étudierons un dispositif pour obtenir le meilleur échauffement possible. Par ailleurs, nous développerons et étudierons des couches hydrophobes et superhydrophobes. Lors de l'échauffement, la puissance acoustique est telle que la goutte peut s'étaler si elle se trouve sur une surface hydrophile ou se déplacer dans le cas de couche (super)hydrophobe. L'utilisation de ce type de couche est donc importante. Dans notre cas, le principal but est d'ancrer les microgouttes à un endroit précis pour ainsi éviter leur déplacement lors de l'échauffement. Enfin, nous présenterons une application de cet échauffement avec la réaction de PCR (Polymerase Chain Reaction : Reaction en chaîne par polymérase). Cette réaction, très importante dans le domaine de la biologie, permet la duplication de brins d'ADN par cycle de température. Celle-ci a fait l'objet de nombreuses études quant à sa miniaturisation et s'intègre de plus en plus dans des systèmes type laboratoire sur puce. Nous validerons d'abord sa compatibilité avec les ondes élastiques de surface de type Rayleigh avant de tester, le cas échéant, la réaction elle-même.

Bibliographie

- [1] C. Campbell, Surface Acoustic Wave Devices for Mobile and Wireless Communications, Academic Press, 1998.
- [2] D. Morgan, Surface Acoustic Wave Device for Signal Processing, Elsevier, 1991.
- [3] J. Curie et P. Curie, Comptes Rendus de l'Académie des sciences de Paris, vol. 91, p. 294, 1880.
- [4] P. Curie et J. Curie, «Notice sur les travaux scientifiques», Archives de l'académie des sciences de Paris, 1902.
- [5] P. Curie et J. Curie, Comptes Rendus de l'Académie des sciences de Paris, vol. 93, p. 1137, 1881.
- [6] Grand Larousse, Larousse, 2008.
- [7] D. Royer et E. Dieulesaint, Ondes élastiques dans les solides, Tome 1: Masson, 1996.
- [8] B. Auld, Acoustic field and wave in solids, volume 2: Krieger, 1990.
- [9] M. Brissaud, Matériaux piézoélectriques: caractérisation, modélisation et vibration, Presses Polytechniques et universitaires de Romandes, 2007.
- [10] D. S. Ballantine, R. M. White, S. J. Martin, A. J. Ricco, G. C. Frye, E. Zellars et H. Wohltjen, Acoustic Wave Sensors - Theory, Design, and Physico-Chemical Applications, Academic Press, 1997.
- [11] Rayleigh, «On waves propagated along the plane surface of elastic solid», Proceedings London Mathematical Society, vol. 1, pp. 4-11, 1885.
- [12] A. Love, Some problems of geodynamics, Cambridge Univ. Press., 1911.
- [13] E. Adler, «Saw and pseudo-saw properties using matrix methods», IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, vol. 41, pp. 876-882, 1994.
- [14] H. Engan, «Elastic surface waves in α -quartz: observation of leaky surface waves», Applied Physics Letters, vol. 10, p. 311, 1967.
- [15] S. Joshi et R. White, «Excitation and Detection of Surface Elastic Waves in Piezoelectric Crystals», Acoustical Soc America-J, vol. 46, pp. 17-27, 1969.
- [16] R. White, «Surface elastic waves», Proc. IEEE, vol. 58, pp. 1238-1276, 1970.
- [17] D. Royer et E. Dieulesaint, Ondes élastiques dans les solides, Tome 2: Masson, 1999.
- [18] S. Datta, Surface Acoustic Wave Devices, Prentice Hall, 1986.
- [19] D. Frederick et A. Carlson, Linear systems in communication and control, New York: John Wiley & Sons, Inc, 1971.
- [20] P. Defranould et P. Wright, «Filtres à ondes de surface», Techniques de l'Ingénieur, p. E 2 200, 2000.

- [21] J. Hines et D. Malocha, «A simple transducer equivalent circuit parameter extraction technique», *Proceeding of IEEE Ultrasonics Symposium*, pp. 173-177, 1993.
- [22] D. Beyssen, *Conception, étude et réalisation de micro-capteur et micro-actionneurs chimiques et biologiques à base de dispositifs à ondes acoustiques de surface*, Thèse de doctorat de l'Université Henri Poincaré Nancy-I, 2006.
- [23] T. Wu et I. Chang, «Actuating and detecting of microdroplet using slanted finger interdigital transducers», *Journal of applied physics*, vol. 98, p. 024903, 2005.
- [24] W. Tseng, J. Lin, W. Sung, S. Chen et G. Lee, «Active micro-mixers using surface acoustic waves on Y-cut 128° LiNbO₃», *J. Micromech. Microeng.*, vol. 16, p. 539–548, 2006.
- [25] J. Kondoh, N. Shimizub, Y. Matsuic, M. Sugimotod et S. Shiokawae, «Development of temperature-control system for liquid droplet using surface Acoustic wave devices», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 149, p. 292–297, 2009.
- [26] M. Alghane, B. Chen, Y. Fu, Y. Li, J. Luo et A. Walton, «Experimental and numerical investigation of acoustic streaming excited by using a surface acoustic wave device on a 128° YX-LiNbO₃ substrate», *J. Micromech. Microeng.*, vol. 21, p. 015005, 2011.
- [27] S. Alzuaga, *Manipulation de gouttes de liquides par des méthodes acoustiques*, Thèse de doctorat de l'Université de Franche-comté, 2004.
- [28] D. Chauvin, G. Coussot et E. Dieulsaint, «Acoustic- surface- wave television filters», *Electronics Letters*, vol. 7, pp. 491-492, 1971.
- [29] I. Voiculescu et A. Nordin, «Acoustic wave based MEMS devices for biosensing applications», *Biosensors and Bioelectronics*, vol. 33, pp. 1-9, 2012.
- [30] V. Raimbault, D. Rebière, C. Dejous, M. Guirardel, J. Pistré et J. Lachaud, «High frequency microrheological measurements of PDMS fluids using saw microfluidic system», *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 144, p. 467–471, 2010.
- [31] K. Mitsakakis, A. Tserapi et E. Gizeli, «SAW device integrated with microfluidics for array-type biosensing», *Microelectronic Engineering*, vol. 86, p. 1416–1418, 2009.
- [32] T. Uchida, T. Suzuki et S. Shiokawa, «Investigation of acoustic streaming excited by surface acoustic waves», *IEEE Ultrasonics Symposium*, pp. 1081-1084, 1995.
- [33] W. Nyborg, *Acoustic streaming, Physical Acoustic, Part B, Vol. 1*, 1965.
- [34] L. Zarembo et L. Rozenberg, *Acoustic Streaming, High intensity ultrasonic fields, Part 3*, Springer, 1971.
- [35] H. Bouasse, *Résistances des fluides*, Librairie Joseph Gibert, 1928.
- [36] P. Biquard, «Les ondes ultra-sonores», *Revue d'Acoustique*, vol. 1, pp. 93-109, 1932.
- [37] N. Marinesco, «Propriétés piézochimiques, chimiques et biophysique des ultrasons : techniques des ondes de haute fréquence», Ed. Hermann, 1937.
- [38] B. ISSENMANN, *Déformations d'interfaces fluides par la pression de radiation acoustique*, Thèse de doctorat de l'université Bordeaux I, 2007.
- [39] C. Bradley, «Acoustic streaming field structure: The influence of the radiator», *Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 100, pp. 1399-1408, 1996.
- [40] J. Lamb, *Thermal relaxation in liquids, Physical acoustics, Vol. 2A*, Academic Press, 1965.
- [41] T. Litovitz et C. Davis, *Structural and shear relaxation in liquids, Physical acoustics, Vol. 2A*; Academic Press, 1965.

- [42] A. Wixforth, «Acoustically driven planar microfluidics», *Superlattices and Microstructures*, vol. 33, p. 389–396, 2003.
- [43] S. Shiokawa, Y. Matsui et T. Ueda, «Liquid streaming and droplet formation caused by leaky rayleigh waves», *IEEE Ultrasonics Symposium*, vol. 1, pp. 643-646, 1989 .
- [44] M. Baudoin, P. Brunet, O. Bou Matar et E. Herth, «Low power sessile droplets actuation via modulated surface acoustic waves», *Applied Physics Letters*, vol. 100, p. 154102, 2012.
- [45] P. Brunet, M. Baudoin, O. Bou Matar et F. Zoueshtiagh, «Droplet displacements and oscillations induced by ultrasonic surface acoustic waves: A quantitative study», *Physical Review*, vol. 81, p. 036315, 2010.
- [46] D. Collins, T. Alan, K. Helmersen et A. Neild, «Surface acoustic waves for on-demand production of picoliter droplets and particle encapsulation», *Lab on a Chip*, vol. 13, p. 3225–3231, 2013.
- [47] A. Gantner, R. Hoppe, D. Köster, K. Siebert et A. Wixforth, «Numerical simulation of piezoelectrically agitated surface acoustic wave on microfluidic biochips», *Computing and Visualization in Science*, vol. 10, pp. 145-161, 2007.
- [48] A. Sano, Y. Matsui et S. Shiokawa, «New manipulator based on surface acoustic wave streaming», *Jpn. J. Phys.*, vol. 37, pp. 2979-2981, 1998.
- [49] P. Brunet, M. Baudoin, O. Bou Matar et F. Zoueshtiagh, «Déformation et déplacement de gouttes par ondes de surfaces acoustiques», 10eme Congrès Français d'Acoustique, 2010.
- [50] A. Renaudin, P. Tabourier, V. Zhang, J. Camart et C. Druon, «SAW nanopump for handling droplets in view of biological applications», *Sensors and Actuators B*, vol. 113, p. 389–397, 2006.
- [51] A. Renaudin, P. Tabourier, J. Camart et C. Druon, «Surface acoustic wave two-dimensional transport and location of microdroplets using echo signal», *Journal of applied physics*, vol. 100, p. 116101, 2006.
- [52] A. Renaudin, J. Sozanski, B. Verbeke, V. Zhang, P. Tabourier et C. Druon, «Monitoring SAW-actuated microdroplets in view of biological applications», *Sensors and Actuators B*, vol. 138, pp. 374-382, 2009.
- [53] C. J. Strobl, A. Rathgeber, A. Wixforth, C. Gauer et J. Scriba, «Planar microfluidic processors», *IEEE Ultrasonics Symposium*, vol. 1, pp. 255-258, 2002.
- [54] M. Jo et R. Guldiken, «Dual surface acoustic wave-based active mixing in a microfluidic channel», *Sensors and Actuators A*, vol. 196, p. 1– 7, 2013.
- [55] R. Brüning, A. Winkler, G. Guhr et H. Schmidt, «Active Mixing in Microfluidic Systems Using Surface Acoustic Waves», *IEEE International Ultrasonics Symposium*, pp. 794-796, 2011.
- [56] K. Sritharan, C. Strobl, M. Schneider et A. Wixforth, «Acoustic mixing at low Reynold's numbers», *Applied Physics Letters*, vol. 88, p. 054102, 2006.
- [57] J. Vanneste et O. Bühler, «Streaming by leaky surface acoustic waves», *Proc. R. Soc. A*, vol. 467, p. 1779–1800, 2011.
- [58] Y. Zha et A. Zhang, «A microreactor using surface acoustic wave as energy source», *Symposium on Piezoelectricity, Acoustic Waves and Device Applications (SPAWDA)*, pp. 215 - 218, 2012.
- [59] A. Zhang, Y. Wei et Q. Han, «A Microreactor With Surface Acoustic Wave Micro-Heating System», *Ferroelectrics*, vol. 432, pp. 22-31, 2012.
- [60] J. Friend, L. Yeo, D. Arifin et A. Mechler, «Evaporative self-assembly assisted synthesis of polymeric nanoparticles by surface acoustic wave atomization», *Nanotechnology*, vol. 19, p. 145301, 2008.

- [61] A. Qi, J. Friend et L. Yeo, «A Miniaturized Surface Acoustic Wave Atomizer with a Disposable Pump-free Liquid Supply System for Continuous Atomization», Proceedings of the 2011 6th IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems, pp. 289 - 292 , 2011.
- [62] A. Qi, L. Yeo, J. Friend et J. Ho, «The extraction of liquid, protein molecules and yeast cells from paper through surface acoustic wave atomization», Lab on a Chip, vol. 10, p. 470–476, 2010.
- [63] J. Ho, M. Tan, D. Go, L. Yeo, J. Friend et H. Chang, «Paper-Based Microfluidic Surface Acoustic Wave Sample Delivery and Ionization Source for Rapid and Sensitive Ambient Mass Spectrometry», Anal. Chem., vol. 83, pp. 3260-3266, 2011.
- [64] A. Qi, J. Friend et L. Yeo, «Inhaled pulmonary drug delivery platform using surface acoustic wave atomization», Micro/Nanoscale Heat and Mass Transfer International Conference, pp. 335-342, 2009.
- [65] Y. Yamakita, Y. Matsui et S. Shiokaa, «New method for measurement of contact angle (droplet free vibration frequency method)», Jpn. J. Appl. Phys., vol. 38, pp. 3127-3130, 1999.
- [66] K. Miyamoto, S. Nagatomo, Y. Matsui et S. Shiokawa, «Non-linear vibration of liquid droplet by surface acoustic wave excitation», Jpn. J. Appl. Phys., vol. 41, pp. 3465-3468, 2002.
- [67] T. Franke, A. Abate, D. Weitz et A. Wixforth, «Surface acoustic wave (SAW) directed droplet flow in microfluidics for PDMS devices», Lab on a Chip, vol. 9, p. 2625–2627, 2009.
- [68] S. Li, X. Ding, F. Guo, Y. Chen, M. Lapsley et S. Lin, «An On-Chip, Multichannel Droplet Sorter Using Standing Surface Acoustic Waves», Analytical chemistry, vol. 85, pp. 5468-5474, 2013.
- [69] L. Schmid et T. Franke, «SAW-controlled drop size for flow focusing», Lab on a Chip, vol. 13, p. 1691–1694, 2013.
- [70] Y. Li, B. Flynn, W. Parkes, Y. Liu, Y. Fengt, A. Ruthven, J. Terry, L. Haworth, A. Bunting, J. Stevenson, S. Smith, P. Bobbili, Y. Fut et A. Walton, «The Integration of EWOD and SAW Technologies for Improved Droplet Manipulation and Mixing», Proceedings of the European Solid State Device Research Conference, pp. 371 - 374, 2009.
- [71] Y. Li, Y. Fu, B. Flynn, W. Parkes, Y. Liu, J. Terry, L. Haworth, A. Bunting, J. Stevenson, S. Smith et A. Walton, «Test Structures for Characterising the Integration of EWOD and SAW Technologies for Microfluidics», IEEE International Conference on Microelectronic Test Structures, pp. 52-57 , 2010.
- [72] Y. Li, Y. Fu, S. Brodie, M. Alghane et A. Walton, «Enhanced micro-droplet splitting, concentration, sensing and ejection by integrating electrowetting-on-dielectrics and surface acoustic wave technologies», 16th International Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems Conference (TRANSDUCERS), pp. 254-257 , 2011.
- [73] Y. Li, R. Fu, D. Winters, B. Flynn, B. Parkes, D. Brodie, Y. Liu, J. Terry, L. Haworth, A. Bunting, J. T. M. Stevenson et C. Mack, «Test Structures for Characterizing the Integration of EWOD and SAW Technologies for Microfluidics», IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing, pp. 323-330, 2012.
- [74] Y. Li, Y. Fu, S. Brodie, M. Alghane et A. Walton, «Integrated microfluidics system using surface acoustic wave and electrowetting on dielectrics technology», Biomicrofluidics, vol. 6, p. 012812, 2012.
- [75] A. Yabe, Y. Hamate, S. Nagasawa et H. Kuwano, «A novel narrow mist spray device using surface acoustic wave with a channel», 16th International Solid-State Sensors, Actuators

and Microsystems Conference (TRANSDUCERS), 2011.

Chapitre 3

Traitement de surface

Chapitre III : Traitement de surface

III.A. Introduction

La couche présente entre la goutte et le substrat est très importante avec les dispositifs microfluidiques à ondes élastiques de surface. Avec les liquides utilisés et sans traitement de surface hydrophobe, la goutte posée sur le substrat n'adopte pas une forme sphérique mais s'étale, dû à la faible rugosité des substrats utilisés ainsi qu'à leur tension superficielle importante. Dans ces conditions, le système est dit mouillant. Ainsi, la goutte s'étale et l'observation des différents phénomènes est impossible. Pour éviter ce phénomène, des techniques de réalisation de couche hydrophobe à la surface du substrat piézoélectrique sont apparues. Le système n'est ainsi plus mouillant et les gouttes apparaissent alors sous forme quasi sphérique. Plusieurs effets sont ainsi observables lorsqu'une goutte se trouve sur le chemin d'une onde élastique de surface de type Rayleigh. Lorsque l'énergie de l'onde élastique croît, on observe respectivement :

- Un mélange interne à la goutte
- La vibration de la surface libre de la goutte
- L'échauffement
- Le déplacement
- L'atomisation

L'échauffement de la goutte est souvent non désiré pour des applications de type laboratoire sur puce, afin d'éviter par exemple la destruction de réactifs ou de produits. Les surfaces hydrophobes contribuent à éviter l'échauffement. En effet, en réduisant l'énergie nécessaire au déplacement de la goutte, l'échauffement de la goutte est limité et le déplacement facilité.

Dans notre cas, le but de cette surface n'est pas d'abaisser l'énergie nécessaire au déplacement des gouttes. Au contraire, cette couche doit repousser la limite du seuil d'actionnement afin de chauffer d'avantage la goutte tout en évitant l'étalement de celle-ci. L'étude de l'échauffement de la goutte sera ainsi facilitée. Par ailleurs, l'onde élastique de Rayleigh, se propageant à la surface du substrat piézoélectrique, va interagir avec la couche hydrophobe. Les caractéristiques de l'onde peuvent ainsi être modifiées par ce revêtement. Nous devons donc prendre en compte cette interaction et déterminer si les couches hydrophobes sont compatibles avec les dispositifs à ondes élastiques de surface.

Avant de présenter les couches choisies, les techniques expérimentales et les résultats, rappelons rapidement quelques notions de base comme la tension superficielle, la longueur capillaire, le mouillage ainsi que la loi de Young-Dupré.

III.A.1. La tension superficielle

A la surface d'un milieu dense (liquide ou solide) ou à l'interface entre deux milieux denses, la matière n'est pas rigoureusement dans le même état que dans le volume. Cet état local possède une énergie légèrement supérieure due à l'énergie de cohésion entre les molécules voisines identiques. Celles-ci s'attirent et créer une interface revient donc à perdre une partie de cette énergie de cohésion. Plus l'énergie de cohésion est importante, plus la tension superficielle est grande. Une molécule est dans un état énergétique défavorable à l'interface entre deux milieux, comparé à une autre molécule dans le volume (Figure III.1). Notons U l'énergie de cohésion par molécule. L'une d'elle, à l'interface entre deux milieux, perd approximativement $0,5U$. La tension de surface mesure directement ce défaut d'énergie par unité de surface. Si a est la dimension moléculaire et a^2 la surface exposée par molécule, la tension de surface est la suivante : $\gamma \approx U/2a^2$. Pour la plupart des huiles, où les interactions sont de type Van der Waals, l'énergie de cohésion est équivalente à l'agitation thermique $U \approx kT \rightarrow U \approx \frac{1}{40} eV$ à $25^\circ C$. La tension superficielle vaut alors $\gamma \approx 20 mN.m$. Pour l'eau, cette tension superficielle est plus grande due aux liaisons hydrogènes, $\gamma \approx 72 mN.m$. Enfin, le mercure est un métal très cohésif : $U \approx 1 eV$ et $\gamma \approx 500 mN.m$. Pour finir, le Tableau III.1 présente les tensions superficielles de plusieurs liquides courants et de ceux que nous utiliserons au long de ces travaux. Bien que l'origine de la tension superficielle s'explique au niveau moléculaire, c'est une grandeur macroscopique et donc définie à notre échelle.

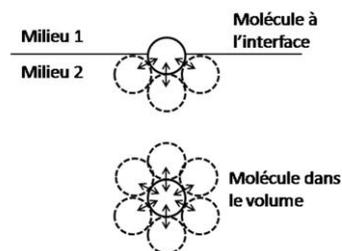


Figure III.1 : Molécule à l'interface entre deux milieux et molécule dans le volume du milieu 2. L'énergie de celle à l'interface est moindre par rapport à la seconde.

Liquide	Eau (25°)	Eau (100°C)	Glycérol (20°)	Acétone (20°)	Ethanol (20°)	Mercure (20°)
γ (mN.m)	72	58	63	24	22,3	436

Tableau III.1 : Tension superficielle de plusieurs liquides

III.A.2. La longueur capillaire

A grande échelle, la surface de l'eau n'adopte pas une forme sphérique mais au contraire une forme plane. Dans un verre d'eau par exemple, la surface du liquide est plane sauf aux bords du verre où les ménisques apparaissent et dont la hauteur ne dépasse pas

quelques millimètres. Les effets de gravité sont supérieurs à ceux de capillarité à grande échelle. On définit la longueur capillaire κ^{-1} comme une dimension caractéristique d'un liquide sur laquelle les forces capillaires et les forces gravitationnelles sont de même grandeur :

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}} \quad (\text{III.1})$$

avec g l'accélération gravitationnelle en m.s^{-2} , ρ la masse volumique en g.cm^{-3} et γ la tension superficielle en N.m^{-1} du liquide dans le gaz considéré. Pour l'eau dans l'air, par exemple, la longueur capillaire est 2,7mm. En dessous de cette valeur, les forces capillaires prédominent et les forces gravitationnelles peuvent être négligées. Pour le mercure dans l'air, la longueur capillaire est 1,8mm ce qui signifie que pour négliger les forces gravitationnelles, les dimensions du liquides doivent être inférieures à celles de l'eau dans l'air. Dans toute cette étude, les dimensions des gouttes ne dépasseront pas la longueur capillaire et les forces gravitationnelles sont alors négligées. Pour observer des phénomènes capillaires à grande échelle, il faut utiliser la microgravité ou remplacer l'air par un liquide non miscible de densité voisine.

III.A.3. Le mouillage

Le mouillage est l'étude du comportement d'un liquide à l'interface avec un solide. Il est possible de rendre mouillant un solide non mouillant et vice versa en contrôlant le phénomène de mouillage. Maîtriser ce phénomène est très important aujourd'hui dans de nombreux domaines, tels que l'automobile pour la préparation des surfaces à peindre ou encore pour le traitement des pneus pour adhérer sur des surfaces mouillées, ou simplement pour le traitement de vitre et de verre pour les rendre hydrophobes afin de limiter leur nettoyage. Il existe deux types de mouillage : le mouillage total lorsque le liquide a une forte affinité pour le solide et le mouillage partiel dans le cas contraire. En posant une goutte à la surface d'un morceau de verre propre, celle-ci s'étale complètement. En revanche, sur du plastique, celle-ci reste sous forme sphérique. Il existe ainsi deux régimes de mouillage que nous représentons sur la Figure III.2. Le paramètre d'étalement S (III.3) est une grandeur permettant de différencier ces deux régimes en mesurant la différence entre l'énergie de surface du substrat sec E_{sec} et l'énergie du système substrat/liquide $E_{sub/liq}$ par unité de surface. θ_E représente l'angle de contact d'équilibre statique de la goutte sur le substrat.

$$\gamma_{LG} \cos \theta_s = \gamma_{SG} + \gamma_{SL} \quad (\text{III.2})$$

$$S = \gamma_{SG} - (\gamma_{SL} + \gamma_{LG}) \quad (\text{III.3})$$

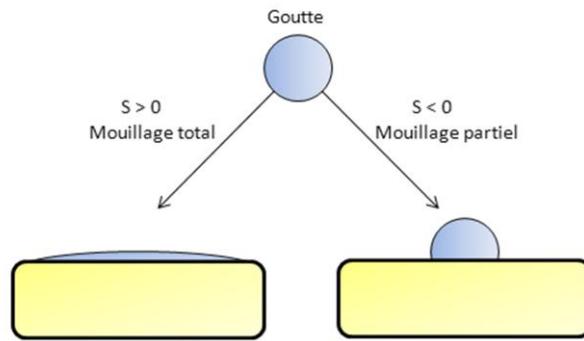


Figure III.2 : Les deux régimes de mouillage. A gauche, le mouillage total lorsque $S > 0$, à droite le mouillage partiel lorsque $S < 0$

L'énergie du substrat sec correspond à la tension superficielle solide/gaz γ_{SG} et l'énergie du système équivaut à la somme des tensions superficielles solide/liquide γ_{SL} et liquide/gaz γ_{LG} ce qui conduit à l'équation (III.3).

Deux cas se présentent alors :

- $S > 0 \rightarrow \gamma_{SG} > \gamma_{SL} + \gamma_{LG}$
 Nous sommes dans le cas d'un mouillage total. Le liquide s'étale complètement pour abaisser l'énergie superficielle du système complet. L'angle de contact θ_E est très faible.
- $S < 0 \rightarrow \gamma_{SG} < \gamma_{SL} + \gamma_{LG}$
 Ici, le mouillage est partiel. L'énergie du substrat sec est plus faible que celle du système substrat/liquide : la surface de contact solide/liquide sera minimisée. La goutte se trouve ainsi sous forme de calotte sphérique sur le substrat. Par convention, le système est dit mouillant si l'angle de contact $\theta_E < 90^\circ$ et non mouillant si $\theta_E > 90^\circ$. Dans le cas du mouillage de l'eau, le solide est dit hydrophobe si l'angle de contact de l'eau est supérieur à 90° et hydrophile si l'angle de contact est inférieur à 90° .

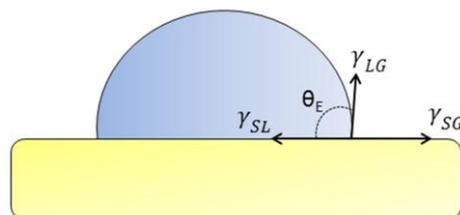


Figure III.3 : Une goutte posée sur une surface hydrophobe avec les trois tensions superficielles représentées γ_{LG} , γ_{SG} et γ_{SL} et l'angle de contact statique θ_E

III.A.4. Loi de Young-Dupré

Dans le cas d'un mouillage partiel où le liquide est non mouillant, l'angle de contact statique, atteint à l'équilibre, correspond à un minimum d'énergie pour le système. Avec une goutte de quelques microlitres ou moins, les effets gravitationnels sont négligés puisque le rayon de la goutte est inférieur à la longueur capillaire κ^{-1} . La goutte adopte ainsi une forme sphérique et l'angle de contact statique à l'équilibre dépend des propriétés de la surface. La relation d'Young (III.4) définit l'angle de contact à l'équilibre de la goutte. Elle est obtenue en équilibrant les tensions superficielles agissant sur la ligne triple formée par le solide, le gaz et le liquide (Figure III.3).

$$\gamma_{LG} \cos \theta_E = \gamma_{SG} + \gamma_{SL} \quad (\text{III.4})$$

En remplaçant (III.3) dans (III.4), il vient :

$$S = \gamma_{LG} (\cos \theta_E - 1) \quad (\text{III.5})$$

Ici, on détermine qu'il est possible de définir θ_E seulement si le paramètre d'étalement est négatif. Dans la réalité, deux angles peuvent être mesurés quand une goutte est posée sur une surface : l'angle de contact d'avancée et l'angle de contact de recul.

III.A.5. Hystérésis de l'angle de contact

En inclinant une surface, on remarque parfois qu'une goutte posée dessus adopte une forme avec deux angles de contact différents. Les angles évoluent jusqu'à une certaine limite où la goutte se met en mouvement. Cette limite dépend, bien sûr, des propriétés plus ou moins hydrophobes du substrat. Un exemple est présenté à la Figure III.4. Les angles de contact correspondant à la limite sont appelés angle d'avancée θ_a et angle de recul θ_r . L'écart entre ces deux angles ($\theta_a - \theta_r$) est l'hystérésis de l'angle de contact, attribuée à des hétérogénéités de surface de nature chimique ou géométrique telles que des défauts de surface (ondulation, stries, sillons...) ou la rugosité de la surface. Ces deux angles encadrent l'angle de contact d'équilibre θ_E sur la surface plane. Nous présentons deux techniques, illustrées sur la Figure III.4, que nous utiliserons pour déterminer ces angles de contact et caractériser les couches réalisées. La première méthode consiste, dans un premier temps, à déposer une goutte sur la surface. L'angle d'avancée est mesuré en injectant du liquide dans la goutte par l'intermédiaire d'une seringue ou d'une micropipette et en observant l'angle lorsque la ligne de contact entre la goutte et le substrat commence à se déplacer. Au contraire, l'angle de recul est mesuré en retirant du liquide de la goutte. La seconde méthode permet de déterminer les deux angles en une étape. Celle-ci consiste à incliner la surface où la goutte est déposée jusqu'à ce qu'elle se déplace. A cet instant précis, les deux angles formés par la goutte correspondent aux angles d'avancée et de recul.

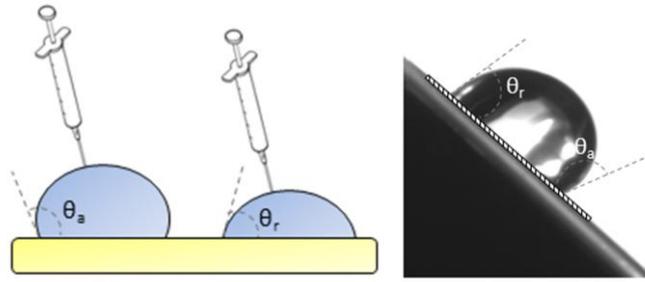


Figure III.4 : Présentation des deux techniques de mesure des angles de contact d'avancée et de recul. A gauche la méthode consistant à ajouter puis à retirer du liquide de la goutte et à droite en inclinant le système.

L'hystérésis de l'angle de contact est un paramètre important lorsque le déplacement de goutte est étudié. L'équation (III.6) donne la force de glissement F_s en Newton nécessaire pour déplacer une goutte sur une surface donnée. Cette équation a tout d'abord été proposée par Furmidge [1] et confirmée plus tard par Dussan et Chow [2] :

$$F_s = 2R\gamma_{LG} \sin\left(\frac{\theta_a + \theta_r}{2}\right) (\cos \theta_r - \cos \theta_a) \quad (\text{III.6})$$

avec R le rayon de la goutte en m. Cette équation montre bien que la force de glissement dépend de l'hystérésis de l'angle de contact à travers le membre $(\cos \theta_r - \cos \theta_a)$. Pour améliorer la mobilité d'une goutte, nous cherchons soit à minimiser l'hystérésis de l'angle de contact, soit à admettre un peu d'hystérésis et à augmenter les deux angles d'avancée et de recul en contrôlant la rugosité de surface. En effet, en augmentant la rugosité de surface d'un matériau hydrophobe, il est possible de réaliser des surfaces super-hydrophobes. Une goutte sur ce type de surface présente un angle de contact élevé supérieur à 150° permettant, dans la plupart des cas, de réduire significativement la force de glissement [3] [4].

III.A.6. Réalisation de surfaces hydrophobes et super-hydrophobes

Il existe de nombreuses possibilités pour réaliser des surfaces hydrophobes et super-hydrophobes. Concernant les surfaces hydrophobes, l'utilisation de polymères est souvent privilégiée due à leur faible tension de surface. On trouve par exemple le polycarbonate [5], le PVDF [6], le PMMA [7], le PDMS [8]... Pour des applications basées sur les ondes élastiques de surface, des couches de faibles épaisseurs sont souhaitables afin de limiter l'atténuation de l'onde. Pour cela, d'autres revêtements existent tels que des couches fluorocarbonées [9] ou des monocouches de silanes [10] [11].

Concernant les surfaces super-hydrophobes, on dénombre aussi de nombreuses méthodes. Elles consistent soit à rendre rugueux un matériau à faible tension superficielle soit à structurer un matériau puis à le recouvrir d'une couche à faible tension superficielle. Ceci peut être obtenu par gravure et lithographie, dépôts chimiques, électrospinning, processus

sol-gel, traitement plasma, couche par couche, ou encore par séparation de phase [12] [13]. Pour les dispositifs à ondes élastiques de surface, aucun des travaux ne porte sur l'utilisation de ces couches pour le déplacement de goutte.

Dans cette étude, nous serons amenés à utiliser plusieurs de ces couches en fonction des expériences que nous souhaitons réaliser. Nous nous intéresserons aux couches de silanes bien connues pour les dispositifs à ondes élastiques de surface ainsi qu'aux couches hydrophobes à base de P(VDF-TrFe) et aux couches super-hydrophobes à base de polycarbonate. Voyons maintenant les techniques de caractérisation de ces couches pour des applications à base d'ondes élastiques de surface.

III.B. Techniques de caractérisation des couches (super) hydrophobes

Il existe de nombreuses techniques de caractérisation des couches (super) hydrophobes d'un point de vue chimique, physique, optique... Dans notre cas et pour des applications à base d'onde élastique de surface, nous nous intéresserons aux caractéristiques de mouillage d'une goutte d'eau posée sur ces surfaces. Nous relèverons les angles de contacts statiques, d'avancée et de recul. Nous déterminerons, en fonction du revêtement, son épaisseur à l'aide d'un profilomètre. Ensuite, nous testerons si les couches influent sur la propagation des ondes élastiques de Rayleigh. Pour cela, nous avons développé un dispositif de type ligne à retard où la surface entre les deux électrodes sera recouverte des couches hydrophobes.

III.B.1. Mesures des angles de contacts statique et dynamique

Pour caractériser les couches réalisées et déterminer les angles de contacts statique et dynamique, nous utilisons une caméra à acquisition rapide de Marque First Ten Angstrom et de référence FTA32 permettant de travailler à différentes vitesse d'acquisition (30, 60, 120, 240 et 360 images par seconde). L'échantillon est posé sur un support et éclairé par une lampe. Le tout est positionné sur une table optique pour fixer chaque composant et éviter les vibrations. Le banc de manipulation permettant de déterminer l'angle de contact statique est présenté à la Figure III.11. La caméra est connectée à un ordinateur et un logiciel dédié permet de prendre des images et d'enregistrer des films. Dans le cas d'observation de l'angle de contact statique, une simple image est capturée et l'angle est déterminé par l'intermédiaire du logiciel.

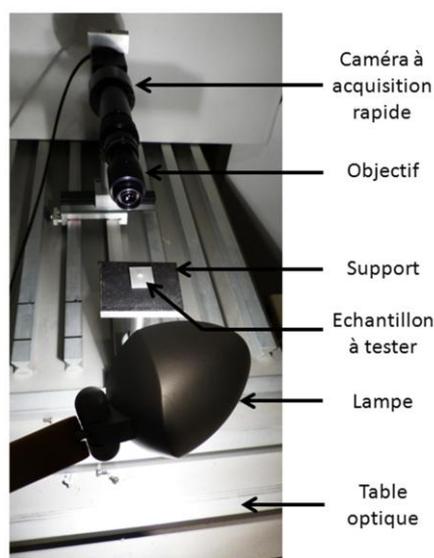


Figure III.5 : Banc expérimental permettant de déterminer l'angle de contact statique d'une goutte posée sur l'échantillon à tester.

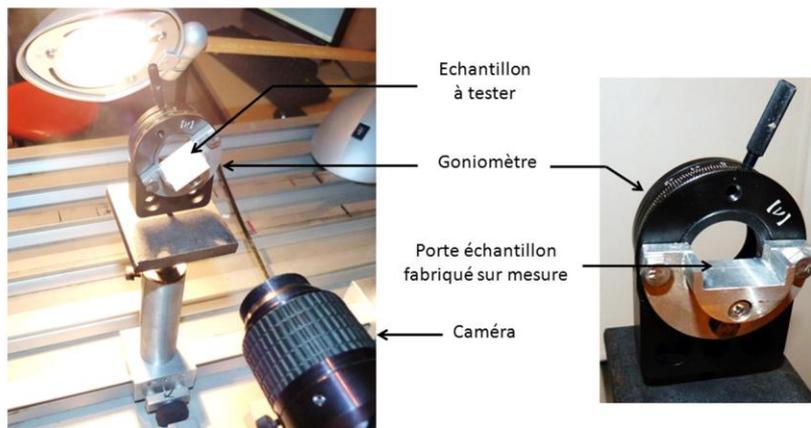


Figure III.7 : Banc expérimental permettant d'observer les angles de contacts d'avancée et de recul à l'aide d'un goniomètre pour inclinaison de l'échantillon.

Les deux bancs expérimentaux permettant l'observation des angles de contacts d'avancée et de recul sont présentés à la Figure III.7 et à la Figure III.6. Ici, les angles sont déterminés lorsque la goutte est en mouvement. La caméra est donc utilisée pour enregistrer des films puis nous choisissons l'image correspondant à l'instant où la ligne triple de la goutte se met en mouvement pour la mesure des angles d'avancée et de recul par le logiciel. La première technique consiste à incliner l'échantillon jusqu'à ce que la goutte se déplace. Pour cela, nous utilisons un goniomètre, inclinable à 90° pour lequel nous avons fabriqué un support d'échantillons (Figure III.7). La deuxième technique est présentée à la Figure III.6. Une première goutte est déposée à la surface de l'échantillon. Nous ajoutons et retirons ensuite du liquide grâce à une micropipette de $20\mu\text{L}$ tenue par un support fabriqué spécialement ainsi que d'une pince de maintien. En injectant et en ponctionnant du liquide, la longueur de contact entre le liquide et le substrat augmente et diminue respectivement. Nous observons ainsi respectivement les angles d'avancée et de recul en fonction de la longueur de contact entre la goutte et le substrat.

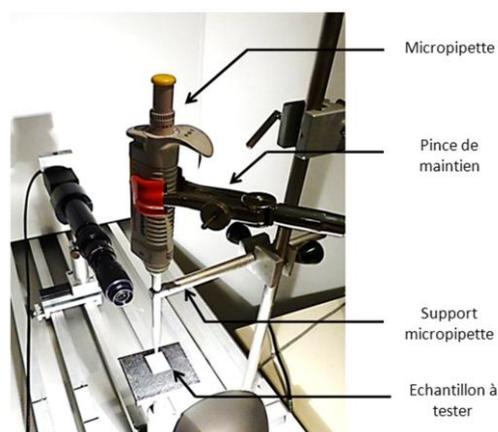


Figure III.6 : Banc expérimental permettant d'observer les angles de contact d'avancée et de recul à l'aide d'une micropipette

III.B.2. Epaisseur des couches

L'épaisseur des couches hydrophobes est déterminée à l'aide d'un profilomètre à contact de marque KLA Tencor de référence P-6. L'échantillon est posé sur une table amovible et s'élève jusqu'à atteindre une pointe immobile de 2µm de diamètre. Lorsque la table est en mouvement, la pointe suit la surface de l'échantillon. Reliée à un détecteur capacitif, elle permet de scanner la surface d'échantillons avec une sensibilité de l'ordre du nanomètre. La table étant capable de se déplacer suivant deux axes, il est possible de réaliser des profils d'échantillons en deux dimensions.

III.B.3. Le dispositif à ondes élastiques de surface

Nous avons développé un dispositif SAW basé sur des lignes à retard pour tester le déplacement de goutte sur les surfaces réalisées. Les électrodes sont réalisées par pulvérisation cathodique et photolithographie en salle blanche sur un substrat de Niobate de Nithium de coupe Y+128°. La pulvérisation cathodique est réalisée dans un bâti de marque Alliance Concept de référence AC450. Les conditions de dépôts de la couche sont précisées au chapitre suivant. Les transducteurs sont constitués de 50 paires de doigts, d'une longueur d'onde de 100µm et de largeur de recouvrement 5mm. La distance séparant les deux électrodes d'une ligne à retard est 20mm correspondant à 200 longueurs d'onde. D'après la relation ($f=v/\lambda$ (II.1)), la fréquence de résonance est 39,96MHz. Une photographie du dispositif est présentée à la Figure III.8. Nous pouvons remarquer que nous disposons de plusieurs lignes à retard nous permettant d'effectuer différents tests.

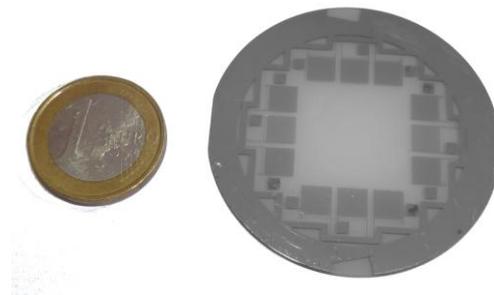


Figure III.8 : Dispositif à ondes élastiques de surface développé pour tester le déplacement de goutte sur les surfaces hydrophobes.

III.B.4. Caractérisation du dispositif à ondes élastiques de surface

Pour caractériser les dispositifs à onde élastique de surface, nous utilisons un analyseur de réseau de marque Agilent Technologies de référence N5230A ainsi que d'une table de test sous pointes RF (Radio Fréquence). Une photographie de l'ensemble est présentée à la Figure III.9. Le « Prober » est un système qui permet la connexion entre les dispositifs SAWs et des appareils de mesures par l'intermédiaire de pointes RF. Le positionnement des pointes s'effectue à l'aide de vis micrométriques sous microscope. Ce système est placé sur une table

soutenue par coussin d'air pour éviter les vibrations. Nous utiliserons aussi ce banc expérimental pour déterminer si les couches hydrophobes influent sur la propagation des ondes élastiques de surface en comparant notamment les réponses fréquentielles du dispositif SAW sans et avec la couche.

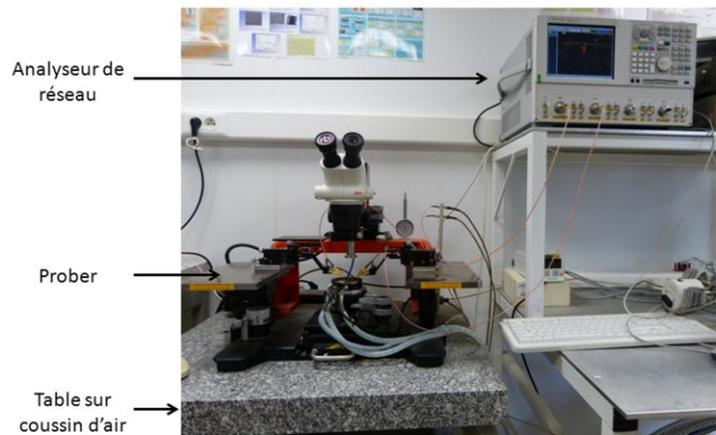


Figure III.9 : Banc expérimental permettant d'obtenir la réponse fréquentielle des dispositifs SAW.

III.B.5. Maintien de la goutte pour l'échauffement

L'objectif de la couche hydrophobe est de maintenir la goutte pour une bonne observation des différents phénomènes sans qu'elle ne se mette en mouvement lorsqu'elle est irradiée par les ondes élastiques. L'effet d'échauffement sera ainsi favorisé. Pour tester la capacité de ces couches à « retenir » une goutte, nous placerons une goutte de 10 μ L d'eau en face d'une électrode du dispositif présenté précédemment. L'électrode est alimentée par un générateur de tension sinusoïdale de marque Hewlett Packard de référence HP459. Le signal est ensuite amplifié par un amplificateur ZHL-5W-1 large bande (5 à 500MHz) de 40dB de gain et de marque Minicircuit. Nous utilisons un coupleur directionnel de même marque et de référence ZFDC-20-4 ainsi qu'un puissance mètre de marque Agilent Technologies de référence E4417A pour déterminer la puissance électrique injectée à l'électrode. Le schéma de principe est présenté à la Figure III.10. La puissance électrique injectée à l'électrode est proportionnelle à l'énergie véhiculée par l'onde élastique. Nous augmenterons ainsi progressivement la puissance injectée jusqu'à la mise en mouvement de la goutte. Ce seuil sera ainsi la puissance maximum que nous pourrions injecter à l'électrode, et donc l'énergie maximum de l'onde, disponible pour échauffer la goutte, avant actionnement.

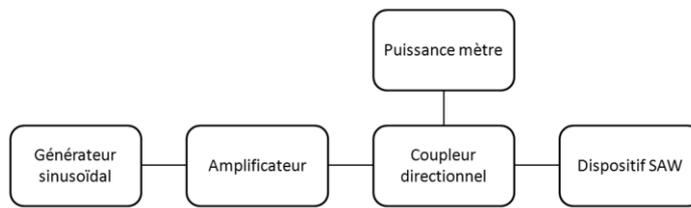


Figure III.10 : Schéma de principe de l'expérience pour déterminer la puissance maximale injectée avant le déplacement de la goutte

III.C. Traitement de surface

III.C.1. Introduction et propriétés intrinsèques du Niobate de Lithium

Sans couche hydrophobe, une goutte posée à la surface d'un substrat de niobate de lithium poli n'adopte pas une forme sphérique. Comme nous le montre la Figure III.11, l'angle de contact statique est de 34° ce qui nous indique le caractère hydrophile du substrat (Figure III.11 a). Les deux angles d'avancée et de recul sont respectivement 20° et 53° déterminés par la technique d'inclinaison du substrat (Figure III.11 b). Sans couche hydrophobe, il est impossible de bouger la goutte lorsque celle-ci est irradiée par des ondes élastiques de surface et l'observation des différents phénomènes n'est pas aisée. Le traitement de la surface du substrat piézoélectrique est donc nécessaire pour, d'une part, une bonne observation de l'échauffement des gouttes. De plus, il serait intéressant de garder la possibilité de déplacer des gouttes après les avoir échauffées. Pour cela, nous avons réalisé différents traitement de surface.

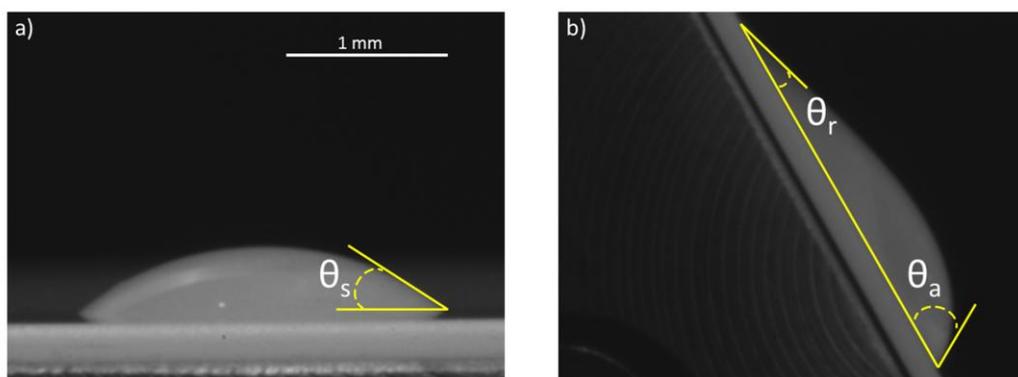


Figure III.11 : Angle de contact d'une goutte de $10\mu\text{L}$ posée sur un substrat de Niobate de Lithium de coupe Y+128°. Angle de contact statique (a) et angle de contact d'avancée et de recul (b)

III.C.2. Monocouche de silane

Une technique bien connue pour les dispositifs à onde élastique de surface est la silanisation du substrat par l'OTS (Octadécyltrichlorosilane) de formule chimique $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{17}\text{SiCl}_3$. Cette technique est un traitement chimique de surface qui consiste en un dépôt d'une monocouche de molécules adsorbées ou « self-assembled monolayers » (SAMs). Elles peuvent être préparées simplement en plongeant le substrat dans une solution contenant la molécule souhaitée. Cette technique d'auto-assemblage est très simple et évite d'utiliser des techniques plus complexes comme la CVD qui, souvent, ne permet pas de contrôler l'épaisseur de la couche formée [13].

La formation des monocouches dépend de nombreux paramètres. Le greffage a été très étudié et beaucoup de travaux portent sur le temps de silanisation, le rôle de la température, de la présence d'eau, de la nature de la chaîne carbonée des molécules greffées et de la

cinétique [13]. Tous ces aspects correspondent à autant de paramètres qu'il est indispensable d'optimiser pour obtenir des films auto-organisés de façon reproductible. Concernant l'assemblage d'OTS sur un substrat de Niobate de Lithium, Bennès *et al.* [11] ont étudié la formation de cette couche et ont présenté un protocole expérimental que nous utiliserons pour la suite. Il a été montré que la stabilité de la monocouche est en grande partie due à la formation de liaisons Siloxy-Niobate (-Si-O-Nb-) par l'intermédiaire d'une réaction entre les liaisons (-Si-Cl) de l'OTS et (-NbOH) à la surface du substrat de Niobate de Lithium (Figure III.12).

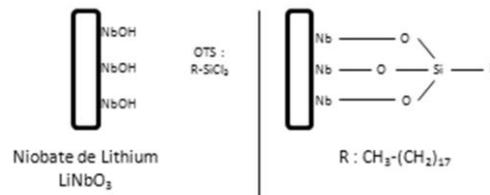


Figure III.12 : Angle de contact statique d'une goutte d'eau posée sur un substrat de 128°Y-X de LiNbO_3 couvert d'une couche d'OTS

III.C.2.1. Protocole

Tout d'abord, le substrat est nettoyé dans un bain d'acétone puis d'éthanol avec ultrasons. Celui-ci est ensuite rincé à l'eau déionisée puis séché sous flux d'azote avant d'être placé dans une chambre sous plasma d'oxygène pendant une minute à 100W. Le substrat est ensuite plongé dans le bain de silanisation pendant 20 minutes. Le bain comprend 0,2% volumique d'OTS dans du toluène. Après cette étape, le substrat est transféré dans un bécher contenant uniquement du toluène pour enlever l'excès d'OTS. Le substrat est ensuite séché sous flux d'azote avant de subir un recuit à 60°C pendant une heure. Pour finir, le substrat est de nouveau plongé dans un bécher de toluène avec ultrasons pendant 5 minutes puis séché sous flux d'azote.

III.C.2.2. Caractérisation de la couche d'OTS

Une fois le protocole expérimentale effectué, une goutte déposée à la surface du substrat silanisé par de l'OTS a un angle de contact statique de 93° , comme le montre la Figure III.14. L'ajout de la couche d'OTS permet d'avoir la goutte sous une forme hémisphérique. L'hystérésis d'angle de contact est mesurée par l'intermédiaire des deux techniques présentées précédemment. La Figure III.13 a) nous montre les résultats de ces mesures avec en a) la technique d'inclinaison du substrat. Le volume de la microgoutte d'eau est $10\mu\text{L}$. Les angles de contact d'avancée et de recul sont respectivement 102° et 90° . L'hystérésis est donc ici de 12° ce qui signifie que nous l'avons divisé par un facteur proche de 3 par rapport au substrat vierge. Pour confirmer ces mesures, nous avons effectué la seconde expérience qui consiste à injecter et retirer du liquide de la microgoutte. La Figure III.13 b) nous montre ces angles. Ces résultats confirment la première expérience. En effet, la moyenne des angles

d'avancée est $99,7^\circ$ et la moyenne des angles de recul est $89,1^\circ$ ce qui nous donne une hystérésis moyenne de $10,6^\circ$.

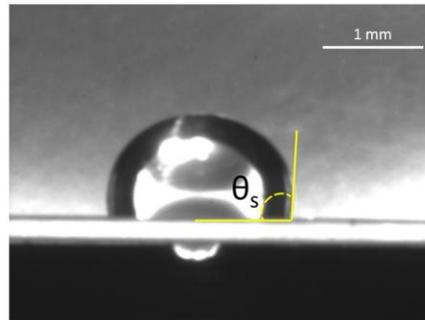


Figure III.14 : Angle de contact statique d'une goutte d'eau posée sur un substrat de 128°Y-X de LiNbO_3 couvert d'une couche d'OTS

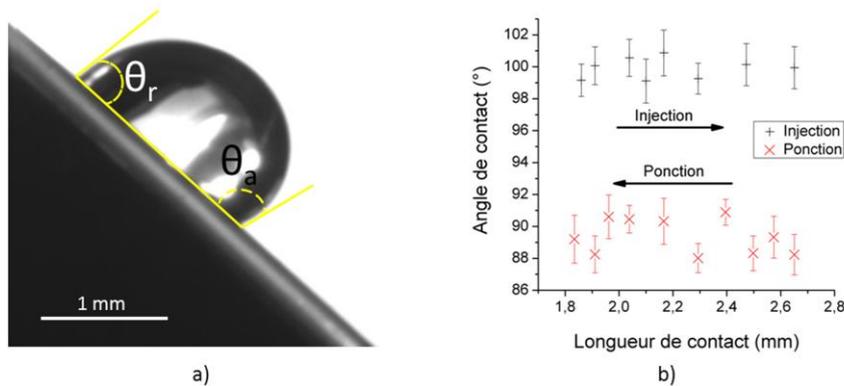


Figure III.13 : Angle de contact d'avancé et de recul d'une goutte posées sur un substrat de Niobate de Lithium de coupe $Y+128^\circ$ couvert d'une couche d'OTS. En a) la technique en inclinant le substrat avec une goutte de $10\mu\text{L}$ et en b) celle en injectant et en ponctionnant du liquide à la goutte.

Nous avons montré qu'il est possible de rendre hydrophobe la surface du substrat choisi de manière à obtenir une goutte de forme sphérique. Cependant, les électrodes générant les ondes élastiques sont réalisées en aluminium et le protocole chimique attaque la couche d'aluminium jusqu'à la graver complètement. Une autre méthode a ainsi été développée qui consiste à utiliser un « tampon » en polymère.

III.C.2.3. Silanisation indirecte du substrat

Pour éviter de graver les électrodes, nous nous sommes basés sur les travaux de J.Bennès [11] qui silanise la surface du substrat de manière indirecte. En effet, la technique consiste d'abord à plonger un « tampon » en polymère dans le bain de silanisation puis à plaquer celui-ci sur le substrat pendant plusieurs heures afin de transférer la couche hydrophobe sur le substrat.

III.C.2.3.1. Protocole

Le protocole expérimental ressemble fortement au précédent. La première étape est la réalisation d'un morceau de PDMS de quelques centimètres carrés qui servira de tampon. Nous utilisons pour cela le kit Sylgard 184 de Dowcorning contenant l'élastomère ainsi que le réticulant. Le mélange des deux est constitué de 10% massique de réticulant que nous mélangeons à l'aide d'une spatule. Après 1h de dégazage dans une cloche à vide, le mélange est transféré dans un moule de quelques centimètres carrés en téflon. Un deuxième dégazage est effectué avant un recuit de 2h à 90°C pour accélérer la polymérisation. La pièce en PDMS subit ensuite le même protocole que présenté précédemment (nettoyage, silanisation, traitement post silanisation). Le substrat est nettoyé aux ultrasons dans de l'acétone puis de l'éthanol et rincé à l'eau déionisée avant séchage sous flux d'azote. Celui-ci est ensuite placé dans une chambre sous plasma d'oxygène pendant une minute à 100W. Les deux pièces sont finalement plaquées l'une contre l'autre pendant 48h et un transfert s'effectue pour former une couche monomoléculaire d'OTS sur le substrat (Figure III.15). Cette technique est intéressante pour fonctionnaliser le substrat. En effet, la méthode précédente permet de réaliser une couche d'OTS sur toute la surface de l'échantillon. Ici, la technique s'exécute en deux étapes et seules les parties choisies du substrat piézoélectrique seront couvertes par une couche d'OTS.

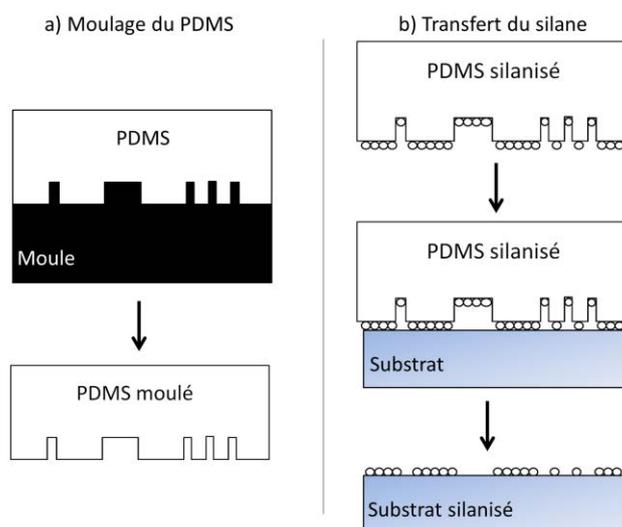


Figure III.15 : Technique indirecte de silanisation du substrat. Un moule tampon en PDMS est d'abord réalisé en a) puis ce moule est couvert d'une couche d'OTS en utilisant le protocole précédent (b). Le moule silanisé est ensuite plaqué contre le substrat pendant plusieurs heures afin de transférer la couche d'OTS.

III.C.2.3.2. Caractérisation de la couche transférée

Dans le but de déterminer si la couche présente les mêmes propriétés que la précédente, nous avons réalisé un tampon plat en PDMS de quelques cm² que nous avons silanisé puis plaqué contre un échantillon de Niobate de Lithium vierge pendant 48h. L'angle de contact statique relevé est présenté à la Figure III.16 et est de 86° ce qui indique une

diminution de 7° par rapport à la couche précédente. On peut donc s'attendre à une légère diminution des propriétés hydrophobes. Les angles d'avancée et de recul sont présentés à la Figure III.17 avec les deux techniques. Sur la Figure III.17 a), les angles d'avancée et de recul sont respectivement 95° et 81° ce qui induit une hystérésis de 14° . La Figure III.17 b) confirme bien ces mesures. La moyenne des angles d'avancée et de recul sont respectivement $92,7^\circ$ et $79,4^\circ$. L'hystérésis des angles de contact est donc de $13,3^\circ$. Nous notons ainsi que comparativement à la couche réalisée de manière directe (III.C.2.2), cette technique indirecte diminue légèrement les propriétés hydrophobes de la couche. Ceci est dû à l'étape du transfert du silane entre la pièce en PDMS et le substrat qui n'est pas parfaite et doit induire des irrégularités. Néanmoins, les propriétés sont assez proches. L'angle de contact statique est diminué de 7° et l'hystérésis a augmenté de 2° .

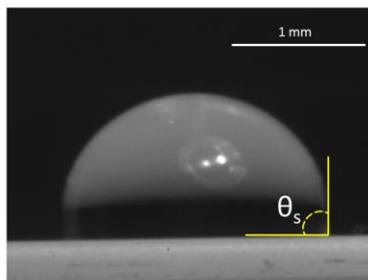


Figure III.16 : Angle de contact statique d'une goutte de $10\mu\text{L}$ posée sur un substrat de Niobate de Lithium de coupe $Y+128^\circ$, recouvert d'une couche d'OTS réalisée de manière indirecte.

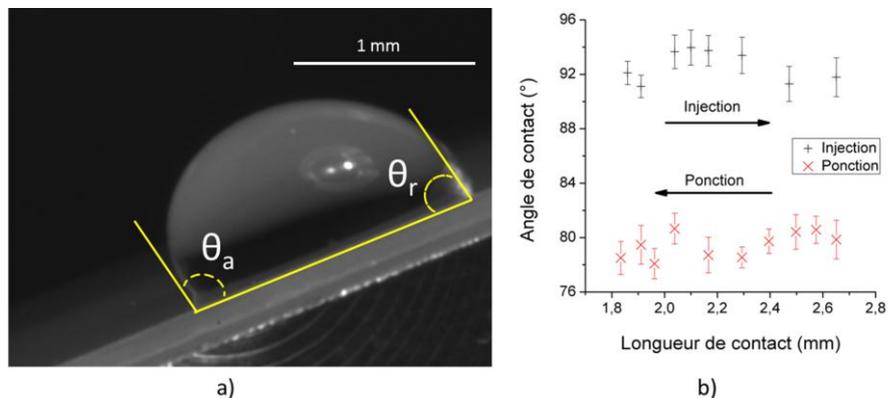


Figure III.17 : Angle de contact d'avancée et de recul d'une goutte posée sur un substrat de Niobate de Lithium de coupe $Y+128^\circ$, couvert d'une couche d'OTS réalisée de manière indirecte. En a) en inclinant le substrat avec une goutte de $10\mu\text{L}$ et en b) en injectant et en ponctionnant du liquide à la goutte.

III.C.2.3.1. Réponse fréquentielle du dispositif SAW silanisé

Nous avons transféré une couche d'OTS entre les deux transducteurs du dispositif afin de déterminer l'influence de la couche d'OTS sur la propagation de l'onde élastique de surface. La réponse fréquentielle, traduite par le module du paramètre S_{21} , du dispositif est présentée à la Figure III.18 avant et après le transfert de la couche d'OTS. Sur la Figure III.18 a) est représentée la réponse fréquentielle sur une large bande allant de 30 à 50MHz. Nous ne remarquons aucun changement notable de la réponse fréquentielle nous indiquant que l'onde

élastique n'est pas atténuée par la couche d'OTS. En réduisant l'échelle de fréquence sur la Figure III.18 b) entre 38,9 et 39,2MHz, on remarque une légère modification de la réponse fréquentielle due à l'atténuation de l'onde élastique par la couche d'OTS. La différence de pertes en propagation entre les deux échantillons est de 0,08dB. Nous notons aussi un léger décalage fréquentiel ($\frac{\Delta f}{f_0} = 0,0225\%$). Ceci s'explique par la couche d'OTS légèrement moins rigide que le substrat. La vitesse de propagation de l'onde est ainsi légèrement réduite ce qui indique, d'après l'équation ($f=v/\lambda$ (II.1)), que la fréquence est abaissée elle aussi. Nous pouvons conclure que la couche d'OTS perturbe légèrement l'onde. Cependant, et d'après ces relevés, on peut considérer que l'effet de la couche est négligeable vis à vis de la propagation de l'onde.

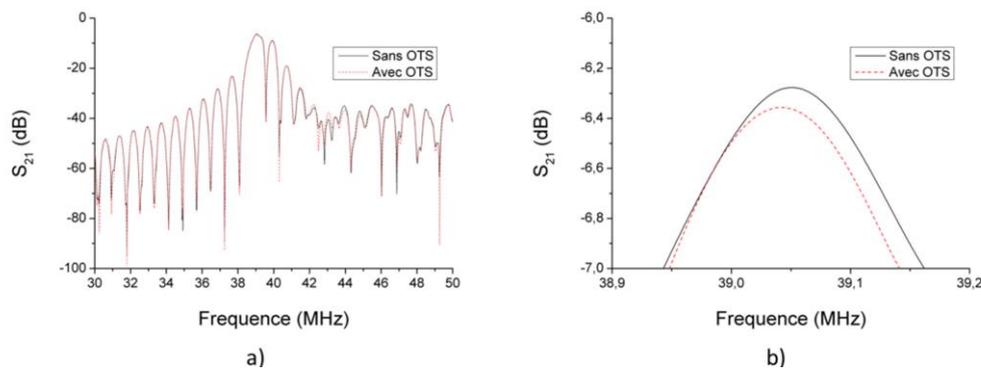


Figure III.18 : Réponse fréquentielle de la ligne à retard SAW avec et sans la couche d'OTS. En a) la réponse fréquentielle entre 30 et 50MHz et en b) un zoom de la réponse fréquentielle autour de la fréquence de résonnance.

III.C.2.3.2. Seuil d'actionnement de la goutte

Avec ce type de revêtement, la goutte reste statique jusqu'à une puissance électrique injectée à l'électrode de 29,4dBm. Au-delà, celle-ci commence à se déplacer. L'échauffement des gouttes par ondes élastiques de surface sera donc observable jusqu'à une puissance maximum de 29,4dBm avec ce revêtement. D'après D.Beyssen [14], cette puissance correspond à un échauffement de 40°C pour une goutte de 20μL dans les meilleures conditions expérimentales, c'est-à-dire avec un liquide très visqueux (le glycérol). La température est encore éloignée de celle maximum de la réaction de PCR (95°C). Pour l'atteindre, nous devons augmenter la puissance électrique et, par conséquent, repousser le seuil d'actionnement de la goutte. Pour cela, nous avons réalisé un autre type de couches hydrophobes à base de polymère.

III.C.3. Couche de copolymère P(VDF-TrFe)

La technique précédente peut paraître assez lourde lorsque nous n'avons pas la nécessité de déplacer des microgouttes. Dans notre cas, la couche hydrophobe doit nous permettre, d'une part, d'avoir une goutte de forme quasi sphérique et d'autre part, de reculer le seuil d'actionnement de la goutte afin de pouvoir l'échauffer d'avantage. Nous optons donc

pour la réalisation de couches minces par spin-coating d'un copolymère biocompatible, le P(VFD-TrFe) (Polyfluorure de vinylidène trifluoroethylene) [15]. Les avantages de cette technique sont qu'il est aisé de réaliser une dissolution du polymère et de l'étaler en fine couche par spin-coating. De plus, une fois les paramètres expérimentaux bien déterminés, une couche peut être réalisée en quelques minutes.

III.C.3.1. Protocole

La première étape consiste à dissoudre 0,7g de P(VDF-TrFe) avec du butanone pour obtenir une solution mère dont la concentration est 2% massique de polymère. Cette solution est ensuite filtrée pour supprimer les impuretés présentes après la dissolution par une seringue porte filtre. On procède ensuite à deux dilutions pour obtenir deux solutions filles de concentration massique 1% et 0,5% massique de polymère. Les échantillons de Niobate de Lithium sont nettoyés dans un bain d'acétone puis d'éthanol avec ultrasons avant d'être rincés à l'eau déionisée puis séchés sous flux d'azote. Les couches sont réalisées par centrifugation à l'aide d'un spin coater de marque Süss Microtec de référence Delta6 RC. Une dernière étape est le recuit des échantillons sur une plaque chauffante à 60° pendant 2 minutes pour assurer l'évaporation totale du solvant et améliorer la cristallinité du dépôt [16]. Nous relevons, dans un premier temps, l'épaisseur des dépôts en réalisant manuellement une « marche » sur les échantillons, soit à l'aide d'un cache mécanique pendant l'étape de spin coating, soit en dégageant une partie du dépôt à l'aide d'un solvant du copolymère. L'épaisseur est relevée en moyennant 5 mesures sur l'échantillon, chaque échantillon étant doublé.

III.C.3.2. Epaisseur des films

Les épaisseurs des films sont présentées à la Figure III.19 pour les trois concentrations de solutions en fonction de la vitesse de rotation (Figure III.19 a) avec une accélération fixe de 1000tour.min⁻¹.s⁻¹ et en fonction de l'accélération (Figure III.19 b) à vitesse fixe de 3000tour.min⁻¹. Nous remarquons que l'épaisseur des dépôts varie linéairement avec la vitesse de rotation et de manière exponentielle avec l'accélération. La concentration du polymère dans la solution joue un rôle majeur pour l'épaisseur du dépôt final. Plus la concentration est importante, plus l'épaisseur l'est aussi. Ces deux relevés nous montrent bien ce comportement ce qui nous indique que le choix de la concentration est tout aussi capital que la vitesse de rotation ou de l'accélération. Intéressons-nous maintenant aux caractéristiques de mouillage de cette couche.

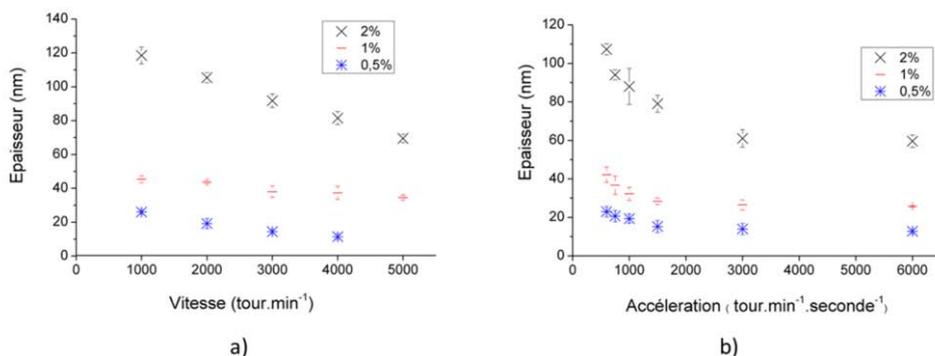


Figure III.19 : Epaisseur des dépôts de P(VDF-TrFe) en fonction de la vitesse en a) avec une accélération fixe de $1000\text{tour}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ et en fonction de l'accélération en b) avec une vitesse fixe de $3000\text{tour}\cdot\text{min}^{-1}$. Les trois concentrations de polymère (2%, 1% et 0,5%) sont représentées sur les deux graphiques.

III.C.3.3. Caractérisation de la couche de P(VDF-TrFe)

L'angle de contact statique de la couche est présenté à la Figure III.20, dans le cas de la couche la plus épaisse (120nm). On remarque que la couche paraît moins hydrophobe que celle d'OTS. En effet, l'angle de contact statique mesuré est 81° avec cette épaisseur. La Figure III.21 nous montre l'évolution de l'angle de contact statique en fonction de l'épaisseur de la couche de P(VDF-TrFe). L'angle de contact statique augmente avec l'épaisseur jusqu'à un maximum de 84° . Entre 11 et 46nm, l'angle de contact ne dépasse pas 52° . Au-delà de 46nm, celui-ci s'élève pour atteindre un palier à partir de 92nm d'épaisseur. Ce comportement peut s'expliquer de deux manières. Lorsque l'épaisseur de la couche du polymère est faible, le substrat de Niobate de Lithium, ayant des caractéristiques hydrophiles (III.C.1) et sur lequel la couche est réalisée, peut influencer sur les propriétés hydrophobe de celle-ci. En effet, les angles de contact statique des gouttes sont réduits lorsque les épaisseurs de film diminuent ce qui peut nous informer que les propriétés hydrophiles du substrat l'emportent sur celles hydrophobes de la couche. Par ailleurs, les caractéristiques de la couche de polymère ne sont pas les mêmes à faible épaisseur. En effet, il a été montré que la cristallinité de ces couches réalisées par spin-coating chute fortement lorsque l'épaisseur est inférieure à 100nm [16]. La

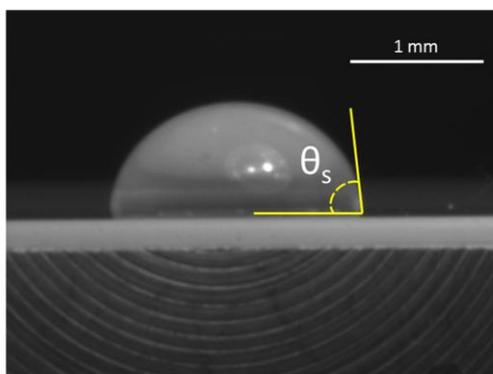


Figure III.20 : Angle de contact statique d'une goutte de $10\mu\text{L}$ posée sur la surface de P(VDF-TrFe). $\theta_s = 80^\circ$.

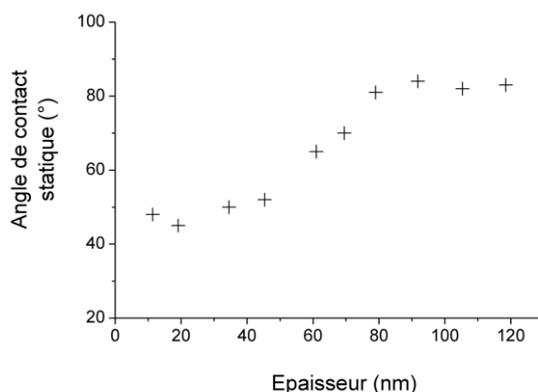


Figure III.21 : Angle de contact statique d'une goutte d'eau de 10 μ L posée à la surface des échantillons en fonction de l'épaisseur de la couche de P(VDF-TrFe).

stabilité de l'angle de contact statique observée à partir d'une épaisseur de 92nm laisse penser que la cristallinité des couches de polymère influe sur les propriétés de mouillage de la goutte. Il est donc important que la cristallinité soit optimum et pour cela, l'épaisseur des couches doit être de l'ordre de ou supérieure à 100nm.

Les angles d'avancée et de recul sont présentés à la Figure III.22 a) ainsi que l'hystérésis de l'angle de contact (Figure III.22 b) pour une couche dont l'épaisseur est 108nm. La moyenne des angles d'avancée et de recul sont respectivement 89,6° et 74°. L'hystérésis des angles de contact est donc de 15,6°, ce qui signifie que la force nécessaire à l'actionnement de la goutte est plus importante qu'avec la couche d'OTS.

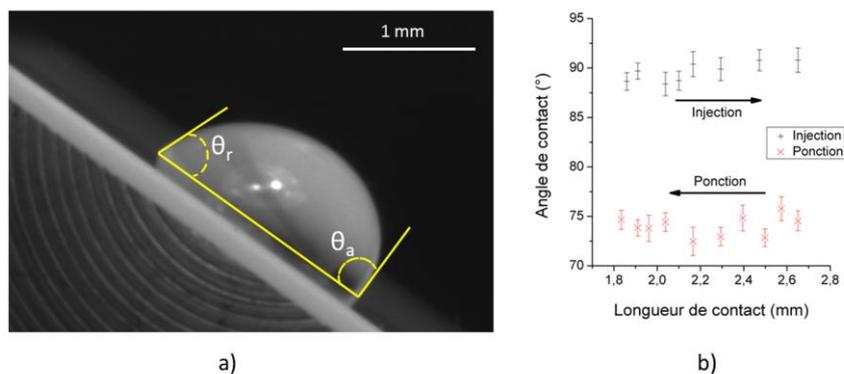


Figure III.22 : Angle de contact d'avancée et de recul d'une goutte posée sur un substrat de Niobate de Lithium de coupe Y+128° couvert d'une couche de P(VDF-TrFe). En a) en inclinant le substrat avec une goutte de 10 μ L et en b) en injectant et en ponctionnant du liquide à la goutte.

III.C.3.4. Réponse fréquentielle du dispositif SAW

La réponse fréquentielle de la ligne à retard est présentée à la Figure III.23, avant et après le dépôt de la couche. Nous remarquons, dans un premier temps, que la réponse fréquentielle n'est manifestement pas modifiée par la couche du polymère (Figure III.23 a). En observant une bande fréquentielle moins large, autour de la fréquence de résonance, nous

remarquons tout de même une atténuation de l'onde élastique par la couche de polymère. A la fréquence centrale, l'onde est atténuée de 0,39dB soit une diminution de 6,2%. Sachant que la distance de propagation entre les deux électrodes est de 20mm et que la longueur d'onde est 100 μ m, l'atténuation est donc très faible et vaut 1,95.10⁻³dB/ λ . Par ailleurs, nous observons un décalage de la fréquence de résonance vers les basses fréquences sur la Figure III.23 b). La différence est de 38kHz ce qui représente une faible variation ($\frac{\Delta f}{f_0} = 0,0973\%$). En effet, la couche de polymère étant moins rigide que le substrat, la vitesse de propagation de l'onde est légèrement réduite ce qui indique, d'après l'équation ($f=v/\lambda$ (II.1)), que la fréquence est abaissée elle aussi. La couche de polymère influe ainsi légèrement sur les propriétés de l'onde élastique. Cependant, les faibles variations constatées peuvent être négligées.

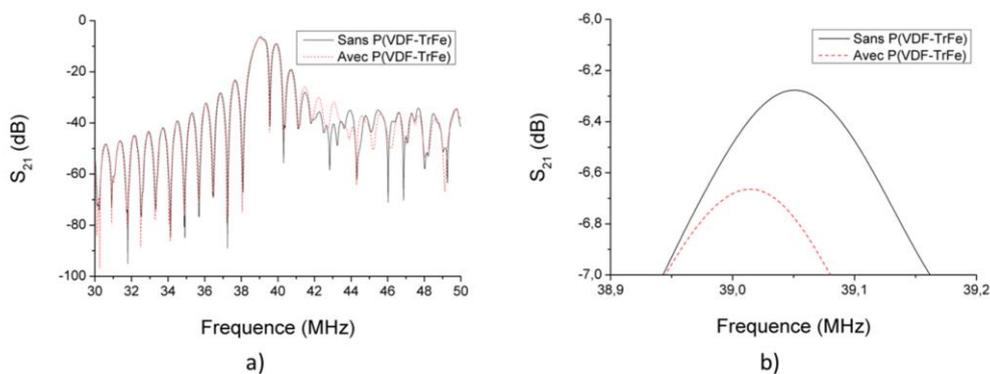


Figure III.23 : Réponse fréquentielle de la ligne à retard SAW avec et sans la couche de P(VDF-TrFe). En a) la réponse fréquentielle entre 30 et 50MHz et en b) un zoom de la réponse fréquentielle autour de la fréquence de résonance.

III.C.3.5. Seuil d'actionnement de la goutte

Une goutte de 10 μ L d'eau est posée à une distance d'environ 10mm de l'électrode interdigitée sur ce revêtement. Celle-ci reste statique jusqu'à une puissance électrique injectée au transducteur de 30,6dB_m, soit un échauffement maximal de 50°C [14]. La température est encore éloignée de celle maximum de la réaction de PCR (95°C). Pour repousser le seuil d'actionnement et échauffer d'avantage la goutte, nous avons pensé à réaliser un « contraste » entre une zone hydrophile (le substrat) et une zone hydrophobe (la couche de polymère), la zone hydrophile ayant une surface inférieure à la surface de contact de la goutte (Figure III.24). Pour ce faire, deux solutions se présentent :

- Avant le processus de fabrication de la couche hydrophobe, nous plaçons un cache mécanique à l'emplacement hydrophile voulu sur le substrat. Une fois la couche réalisée par spin-coating, il suffit de retirer ce cache pour révéler la zone hydrophile du substrat de Niobate de Lithium.
- Après la réalisation de la couche hydrophobe, nous pouvons ôter une zone de ce revêtement pour libérer une zone hydrophile à l'aide d'un solvant du copolymère.

La zone hydrophile obtenue est de forme circulaire et de diamètre 1,5mm. Comme le présente la Figure III.24, la goutte est placée sur la zone hydrophile et adopte une forme sphérique. Dans cette situation, la goutte se déforme mais reste statique et seule la surface libre de la goutte vibre dans toute la gamme de puissance électrique injectée à l'électrode, de 20dB_m à 37dB_m. Avec ces puissances, des températures proches [14] voire supérieures [17] à celle maximum de la PCR sont observables.

Cette couche de copolymère P(VDF-TrFe) présente des caractéristiques très intéressantes pour des applications microfluidiques à base d'ondes élastiques de surface. En effet, nous avons vu que la couche ne perturbe que très peu la propagation des ondes de Rayleigh. Le seuil d'actionnement de la goutte est comparable à d'autres types de revêtement tels que ceux à base de silanes très utilisés avec les dispositifs à ondes élastiques [10] [11]. Par ailleurs, nous avons mis en évidence qu'il était possible, de manière simple, de reculer le seuil d'actionnement de la goutte dans le but d'étudier son échauffement. Nous le verrons dans le chapitre suivant. Pour finir, la réalisation de cette couche, simple et rapide par dissolution du copolymère et par spin-coating, en fait une technique attrayante pour des applications microfluidique à base d'ondes élastiques.

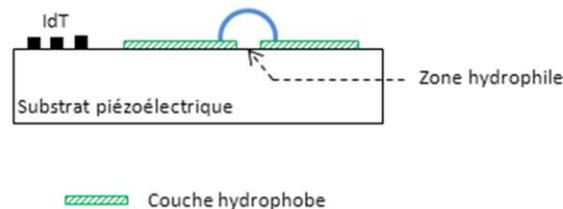


Figure III.24 : Réalisation d'un « contraste » entre une zone hydrophobe (la couche de P(VDF-TrFe)) et une zone hydrophile (le substrat de Niobate de Lithium). La goutte est positionnée sur la zone hydrophile.

III.C.4. Couche super-hydrophobe à base de polycarbonate

Une couche super-hydrophobe peut aussi être réalisée en utilisant un revêtement à base de polycarbonate (PC) biocompatible. A partir d'un protocole simple et économique défini par Zhao *et al.* [4], une couche super-hydrophobe peut être réalisée par VIPS (Vapor Induced Phase Separation). Cette technique rend rugueuse une couche de polycarbonate ayant des propriétés intrinsèques hydrophobes. Elle adopte ainsi une texture similaire à la fleur de lotus et devient ainsi super-hydrophobe. L'angle de contact statique d'une goutte avoisine 160° et une petite inclinaison de 9,4° permet à la goutte de glisser. Comparé à d'autres méthodes présentées par Celia *et al.* [12], les avantages sont ici la simplicité de la technique et la réalisation en une seule étape.

Aucune étude ne porte sur l'interaction entre une onde élastique de Rayleigh et une goutte posée sur une telle surface. Il serait possible de diminuer la force nécessaire à l'actionnement de la goutte pour faciliter son déplacement. Une simple impulsion électrique

de faible amplitude appliquée aux transducteurs pourrait permettre le déplacement de la goutte sur ce type de surface. Cependant, toujours dans l'optique de maintenir la goutte statique pour étudier son échauffement, nous pensons qu'un « contraste » entre une zone super-hydrophobe et une zone hydrophile (le substrat de Niobate de Lithium sur laquelle la goutte serait positionnée) permettrait de maintenir la goutte pour l'échauffer, comme précédemment, tout en gardant la possibilité de la déplacer.

III.C.4.1. Protocole expérimental

Le protocole expérimental de la réalisation de cette couche est simple. Des grains de polycarbonate biocompatible du fabricant Bayer sont dissouts dans le solvant DiMéthylFormamide (DMF) à raison de 5mg.ml^{-1} à l'aide d'une plaque chauffante à 70°C et d'un agitateur magnétique. La solution est ensuite filtrée par une seringue porte filtre pour supprimer les impuretés présentes après la dissolution. Les échantillons de Niobate de Lithium sont nettoyés par un bain d'acétone puis d'éthanol avec ultrasons avant d'être rincés à l'eau déionisée puis séchés sous flux d'azote. La solution est ensuite pipetée puis déposée sur les échantillons de Niobate de Lithium. Le solvant de la solution s'évapore et une couche structurée de polycarbonate se forme. Pour obtenir une surface structurée super-hydrophobe, l'environnement doit avoir un taux d'humidité élevé (supérieur à 70%) [4]. Pour cela, nous avons fabriqué une enceinte quasi-close présentée à la Figure III.25. L'échantillon est posé sur un support entouré d'eau déionisée et une entrée est percée sous le niveau de l'eau pour insérer un flux d'oxygène. En s'échappant, les bulles d'oxygènes sont saturées en vapeur d'eau et permettent d'obtenir un environnement humide. On relève l'humidité proche de l'échantillon à l'aide d'un hygromètre et nous contrôlons son taux en réglant le débit du gaz.

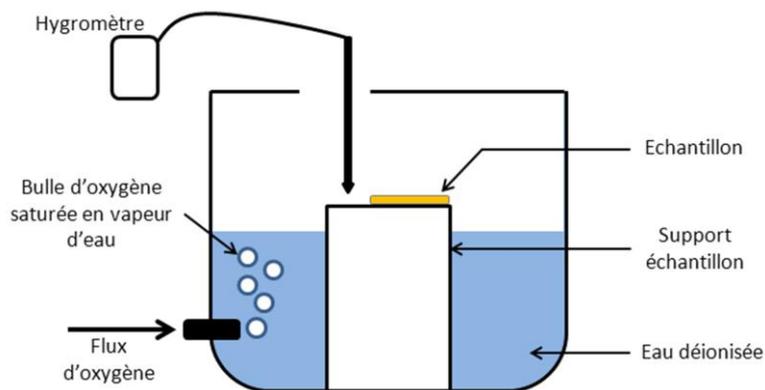


Figure III.25 : Schéma de principe du protocole expérimental pour la réalisation de surface super-hydrophobe à base de polycarbonate.

III.C.4.2. Formation de la couche

L'objectif de cette couche est d'imiter la texture d'une fleur de lotus. Sa surface, très rugueuse (plusieurs micromètres) et de tension superficielle faible ($30\text{-}32\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$) [13], est présentée à la Figure III.26. Elle est constituée d'une structure à deux niveaux :

- Des papilles, de taille micrométrique, offrant une grande rugosité (Figure III.26 a, Figure III.26 b est montrée une papille seule)
- Des piliers, de taille nanométrique, sur et entre les papilles (Figure III.26 b).

Ainsi, une goutte posée sur cette surface est maintenue au sommet des rugosités par un coussin d'air.

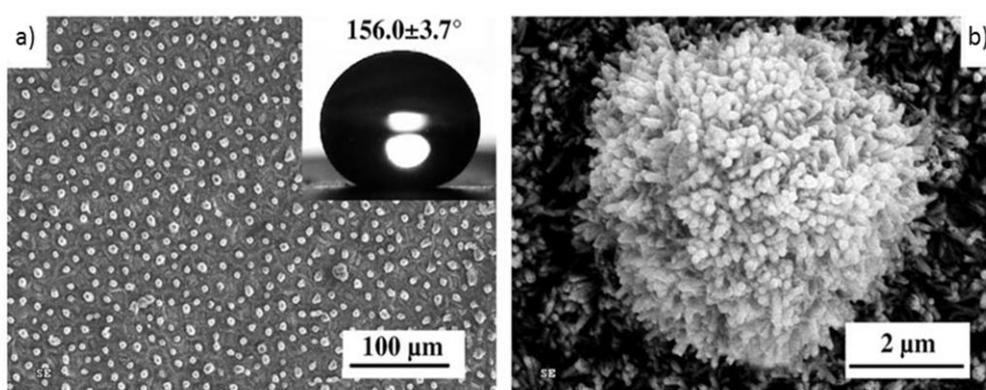


Figure III.26 : Image MEB de la surface d'une fleur de lotus [3].

La technique VIPS présentée permet d'obtenir une couche avec ce type de structure. Dans la littérature, il est connu qu'une solution de polymère devient thermodynamiquement instable lorsque l'évaporation du solvant intervient sous certaines conditions (température, pression, humidité...) [4]. De ce fait, la séparation des phases se produit afin de former une phase riche en polymère et une phase pauvre. La phase riche se solidifie après la séparation de phase et forme la matrice (les rugosités micrométrique) alors que la phase pauvre en polymère forme les piliers (les rugosités nanométriques). Voyons plus en détail.

Le phénomène de VIPS se produit lors de l'utilisation d'un solvant soluble dans l'eau [3] [4]. Dans ce protocole, le DMF, solvant miscible dans l'eau, a été utilisé alors que l'eau n'est pas un solvant du polycarbonate. Ainsi, la formation des rugosités peut être due à un processus VIPS : lorsque la solution est étalée sur l'échantillon dans un environnement humide, la vapeur d'eau pénètre dans la solution en continu. En conséquence, la solubilité du polycarbonate dans le mélange (eau + DMF) faiblit progressivement et mène à la séparation de phases. Au départ, lorsque la quantité d'eau dans la solution augmente, la phase riche en polymère précipite lentement hors de la solution. Le polymère se solidifie sous forme de noyaux pour donner lieu aux rugosités micrométriques à la surface du substrat (Figure III.26 a). Ensuite, la phase pauvre en polymère s'agrége autour des noyaux solides afin de diminuer la

tension superficielle. Les agrégats croissent dans toutes les directions ce qui entraîne la formation des rugosités de tailles nanométriques présentées à la Figure III.26 b.

Au contraire, dans le cas où le solvant est immiscible à l'eau, des microgouttes d'eau se condensent sur la surface de la solution en raison du refroidissement par évaporation du solvant. Après solidification, un film poreux de polymère en nid d'abeilles est formé [18] [19] et dans ce cas, la surface n'est pas structurée telle que la fleur de lotus.

III.C.4.3. Caractérisation de la couche super-hydrophobe

Les angles de contact statique, d'avancée et de recul sont présentés à la Figure III.27. Nous n'avons pas pu tester la seconde technique de détermination des angles de contact d'avancée et de recul. En effet, la couche étant tellement hydrophobe que lors du contact entre la micropipette et la goutte, cette dernière avait tendance à glisser rapidement hors de l'échantillon s'il n'était pas strictement à l'horizontale ou à « coller » la micropipette rendant les observations et les mesures impossibles. Les relevés ont ainsi été réalisés 5 fois afin de moyenner les résultats.

Nous relevons des angles élevés, correspondant aux attentes. L'angle de contact statique est $147^\circ \pm 1,7^\circ$ et les angles d'avancée et de recul sont respectivement $151^\circ \pm 2,1^\circ$ et $144^\circ \pm 1,3^\circ$. L'hystérésis de l'angle de contact est donc $7^\circ \pm 3,4^\circ$ nous indiquant que la force nécessaire à l'actionnement de la goutte est plus faible qu'avec les autres types de revêtement.

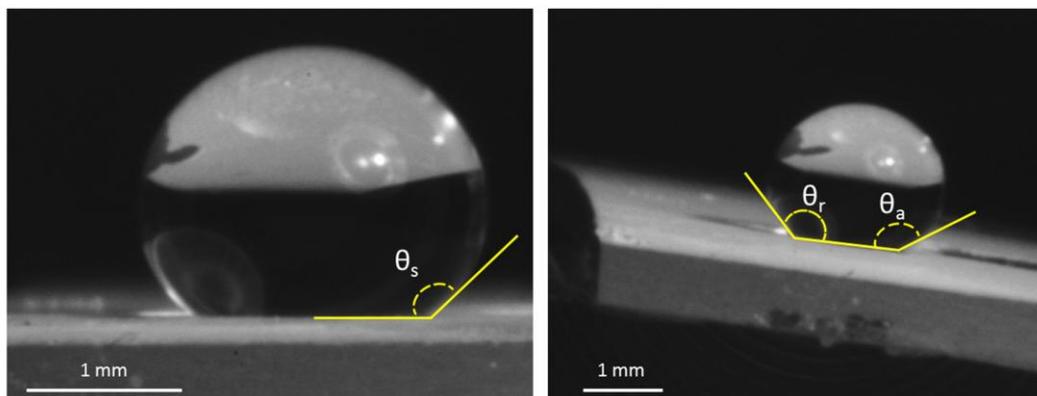


Figure III.27 : Angles de contact statique, d'avancée et de recul d'une goutte d'eau de $10\mu\text{L}$ posée sur la surface de polycarbonate structurée. L'angle θ_s vaut 147° .

III.C.4.4. Réponse fréquentielle, épaisseur et interaction avec une goutte

Une couche de polycarbonate structurée a été réalisée à la surface du dispositif à ondes élastiques de surface. La réponse fréquentielle entre deux transducteurs est présentée à la Figure III.28 avant et après le dépôt. Nous observons que le pic de résonance disparaît nous indiquant que la couche absorbe totalement l'onde élastique de Rayleigh. Pour le vérifier,

nous avons testé si le déplacement d'une goutte est possible. Une goutte d'eau de 10 μ L est ainsi placée entre les deux transducteurs. L'un d'entre eux est excité à la fréquence de résonance relevée sans la couche hydrophobe. Quelle que soit la puissance injectée et ce jusque 5W, avec le premier ou le second transducteur, la goutte ne se déplace pas. Ce comportement est dû à l'épaisseur trop importante du revêtement. Nous l'avons mesuré par l'intermédiaire du profilomètre sur plusieurs échantillons. Nous observons que la couche a une épaisseur de 50,4 μ m \pm 6,8 μ m et une rugosité de 18 μ m \pm 7,9 μ m. L'onde est totalement absorbée par cette couche épaisse et n'atteint pas la goutte. De plus, nous avons observé qu'à fortes puissances électriques injectées au transducteur, le film de polycarbonate se désagrège à l'endroit de l'impact avec l'onde.

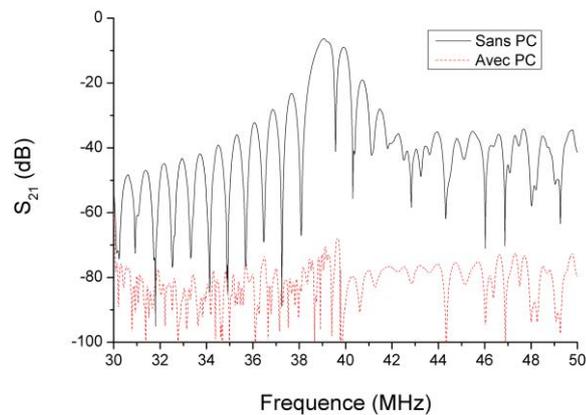


Figure III.28 : Réponse fréquentielle du dispositif avant et après le dépôt de la couche de polycarbonate structurée.

Ce type de revêtement n'est donc pas utilisable pour cette application microfluidique à base d'ondes élastiques de surface de type Rayleigh. L'onde est atténuée rapidement et aucune interaction avec une goutte n'est possible. Cependant, la couche peut être exploitée autrement. En effet, en plaçant ce type de revêtement entre deux zones hydrophobes (Figure III.29), une brève impulsion d'ondes élastiques de Rayleigh permettrait de faire glisser la goutte sur la surface super-hydrophobe jusqu'à la seconde zone hydrophobe.

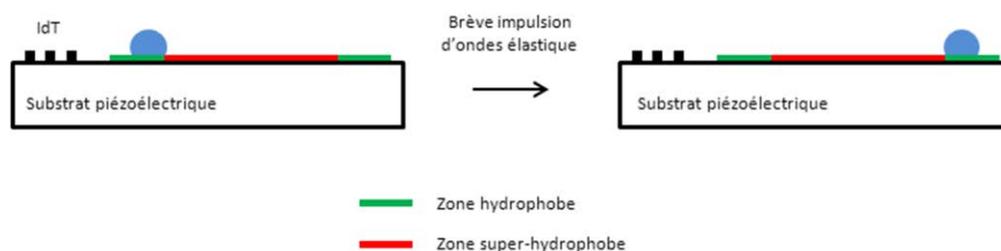


Figure III.29 : Exemple d'application de glissement de goutte par ondes élastiques de surface sur surface super-hydrophobe

III.D. Conclusion

L'objectif de cette partie était de réaliser une couche hydrophobe avec des caractéristiques adéquates au maintien statique d'une goutte pour de hautes puissance électriques injectées au transducteur afin d'étudier, par la suite, l'échauffement de gouttes par les ondes de Rayleigh. Une goutte posée sur le substrat piézoélectrique choisi s'étale et l'observation des différents phénomènes est difficile. L'élaboration d'une couche hydrophobe entre la goutte et le substrat est donc nécessaire.

Nous avons ainsi développé différents types de revêtement hydrophobe et testé leurs capacités à s'intégrer dans notre système d'échauffement de gouttes. Pour cela, des techniques de caractérisations de mouillabilité ont été mises en place pour évaluer les propriétés des couches et choisir celle présentant les meilleures caractéristiques pour notre application.

Le revêtement doit répondre à plusieurs critères à la fois :

- Être biocompatible pour l'application visée
- Ne pas perturber la propagation des ondes élastiques de surface
- Être hydrophobe pour qu'une goutte posée dessus ne mouille pas la surface
- « Maintenir » la goutte statique pour éviter l'étalement et le déplacement de celle-ci lorsqu'elle est irradiée par des ondes élastiques de Rayleigh

Trois types de couches biocompatibles à base de silane (OTS), de co-polymère (P(VDF-TrFe)) et de polymère (PC) ont été testés. Chaque revêtement (super)hydrophobe a été réalisé à partir de leurs protocoles propres. La couche à base d'OTS, bien connue dans les applications microfluidiques à base d'onde élastique de surface, ne « maintient » pas suffisamment la goutte lorsqu'elle est irradiée par les ondes de Rayleigh. Celle à base de polycarbonate n'est pas compatible avec les ondes de Rayleigh car la couche, trop épaisse, absorbe l'onde élastique. Cette dernière ne pouvant plus interagir avec la goutte. Finalement, nous optons pour le troisième revêtement à base de P(VDF-TrFe). Celui-ci répond à tous nos critères et la réalisation des couches est aisée et rapide. Nous utiliserons ainsi ce revêtement dans les prochains chapitres afin d'avoir une goutte de forme hémisphérique et d'étudier son échauffement.

Par ailleurs, nous avons présenté que le seuil d'actionnement de la goutte, sur la couche de P(VDF-TrFe), est comparable aux revêtements à base de silane très utilisés avec les dispositifs microfluidiques à ondes élastiques [10] [11]. Combiné aux autres caractéristiques citées aux paragraphes précédents, ce type de couche paraît, de toute évidence, une solution alternative aux revêtements à base de silane pour le déplacement de goutte.

Bibliographie

- [1] C. Furnidge, «Studies at phases interfaces I. The sliding of liquid drops on solids surfaces and a theory for spray retention», *J. Colloid Sci.*, vol. 17, pp. 309-324, 1962.
- [2] E. Dussan et R. Chow, «On the ability of drops or bobbles to stick to non-horizontal surfaces», *J. Fluid Mech.*, vol. 17, pp. 1-29, 1983.
- [3] N. Zhao, L. Weng, X. Zhang, Q. Xie, X. Zhang et J. Xu, «A Lotus-Leaf-Like Superhydrophobic Surface Prepared by Solvent-Induced Crystallization», *ChemPhysChem*, vol. 7, p. 824 – 827, 2006.
- [4] N. Zhao, J. Xu, Q. Xie, L. Weng, X. Guo, X. Zhang et L. Shi, «Fabrication of Biomimetic Superhydrophobic Coating with a Micro-Nano-Binary Structure», *Macromol. Rapid Commun.*, vol. 26, p. 1075–1080, 2005.
- [5] P. Jankowski, D. Ogonczyk, A. Kosinski, W. Lisowski et P. Garstecki, «Hydrophobic modification of polycarbonate for reproducible and stable formation of biocompatible microparticles», *Lab on a chip*, vol. 11, p. 748–752, 2010.
- [6] H. Fan, Y. Peng, Z. Li, P. Chen, Q. Jiang et S. Wang, «Preparation and characterization of hydrophobic PVDF membranes by vapor-induced phase separation and application in vacuum membrane distillation», *J. Polym. Res.*, vol. 134, pp. 1-15, 2013.
- [7] J. Xu, C. Zhang, T. Shao, Z. Fang et P. Yan, «Formation of hydrophobic coating on PMMA surface using unipolar nanosecond-pulse DBD in atmospheric air», *Journal of Electrostatics*, vol. 71, pp. 435-439, 2013.
- [8] B. Englert, J. Xu et C. Wong, «Microstructured and plasma etched PDMS materials as hydrophobic materials», *11th International Symposium on Advanced Packaging Materials: Processes, Properties and Interface*, pp. 79 - 84 , 2006.
- [9] D. Beyssen, L. Le Brizoual, O. Elmazria et P. Alnot, «Microfluidic device based on surface acoustic wave», *Sensors and Actuators B*, p. 380–385, 2006.
- [10] A. Renaudin, Réalisation d'une plate-forme à ondes acoustiques de surface pour une microfluidique digitale dédiée à la biologie, IEMN, Lille, 2006.
- [11] J. Bennis, S. Ballandras et F. Chérioux, «Easy and versatile functionalization of lithium niobate wafers by hydrophobic trichlorosilanes», *Applied Surface Science*, vol. 255, p. 1796–1800, 2008.
- [12] E. Celia, T. Darmanin, E. Givenchy, S. Amigoni et F. Guittard, «Recent advances in designing superhydrophobic surfaces», *Journal of Colloid and Interface Science*, pp. 1-18, 2013.
- [13] C. Badre, Étude de la réactivité de surface par mesure d'angle de contact: Influence de la fonctionnalisation et de la structure Applications aux films d'oxyde de zinc électrodéposés, Paris: Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), 2007.
- [14] D. Beyssen, Conception, étude et réalisation de micro-capteur et micro-actionneurs chimiques et biologiques à base de dispositifs à ondes acoustiques de surface, Thèse de doctorat de l'Université Henri Poincaré Nancy-I, 2006.
- [15] R. Simoes, M. Rodriguez-Perez, J. De Saja, L. Marques, A. Kinoshita et C. Constantino, «Thermomechanical and Biocompatibility Properties of PVDF and P(VDF-TrFE) Forming Blends Containing Natural Polymers as Additives», *11th international conference on advanced materials*, 2009.

- [16] Q. Zhang, H. Xu, F. Fang, Z. Cheng et F. Xia, «Critical thickness of crystallization and discontinuous change in ferroelectric behavior with thickness in ferroelectric polymer thin films», *Journal Of Applied Physics*, vol. 89, pp. 2613-2616, 2001.
- [17] J. Kondoh, N. Shimizu, Y. Matsui, M. Sugimoto et S. Shiokawa, «Development of SAW thermocycler for small liquid droplets», *IEEE Ultrasonics Symposium*, pp. 1023-1027, 2005.
- [18] O. Karthaus, N. Maruyama, X. Cieren, M. Shimomura, H. Hasegawa et T. Hashimoto, «Water-Assisted Formation of Micrometer-Size Honeycomb Patterns of Polymers», *Langmuir*, vol. 16, pp. 6071-6076, 2000.
- [19] M. Srinivasarao, D. Collings, A. Philips et S. Patel, «Three-Dimensionally Ordered Array of Air Bubbles in a Polymer Film», *Science*, vol. 292, pp. 79-83, 2001.
- [20] M. Khorasani, H. Mirzadeh et Z. Kermani, «Wettability of porous polydimethylsiloxane surface: morphology study», *Applied Surface Science*, vol. 242, pp. 339-345, 2005.

Chapitre 4

Echauffement et uniformité de température de microgouttes

Chapitre IV : Echauffement et uniformité de température de microgouttes

IV.A. Introduction

Maintenant que nous avons réalisé une couche hydrophobe capable de maintenir une goutte statique lorsqu'elle est irradiée par des ondes élastiques de Rayleigh, nous allons étudier l'échauffement possible de cette goutte. Contrairement aux autres effets induits par l'interaction entre un liquide et les ondes de Rayleigh, l'échauffement n'a pas fait l'objet de nombreuses études. Bien au contraire, il est en général non souhaitable pour des applications de type laboratoire sur puce. Cependant, pour certaines réactions biologiques et chimiques telle que la PCR, l'échauffement est nécessaire.

Comme nous l'avons relevé dans le chapitre 2, deux équipes de recherche, dont la nôtre, ont étudié cet aspect. J.Kondoh et D.Beyssen ont montré qu'une onde de forte énergie peut entraîner l'échauffement d'une goutte à des températures supérieures à 100°C en fonction de la viscosité du liquide [1] [2] [3]. J.Kondoh a présenté la possibilité de réaliser des cycles thermiques avec une grande reproductibilité nécessaires par exemple pour la réaction de PCR. L'auteur utilise un thermocouple et un pyromètre pour relever l'évolution de la température. D.Beyssen a effectué des clichés de la microgoutte à l'aide d'une caméra thermique puis moyenné 5 pixels de l'image thermique. Des relevés de deux profils de la microgoutte (profil parallèle aux ondes élastiques de surface et profil perpendiculaire) ont été observés pour juger succinctement l'uniformité de l'échauffement de la goutte. Les mesures de température effectuées par les auteurs sont ponctuelles ce qui retourne une information sur la température de la goutte mais ne reflète pas réellement la température et la distribution de la chaleur au sein de celle-ci. Nous étudierons donc principalement cet aspect fondamental pour la réussite de réactions biologiques et chimiques à l'aide d'une caméra thermique.

A. Zhang [4] a développé un nouveau système d'échauffement de liquide. Il s'agit d'un dispositif de type bain-marie où un premier liquide est échauffé par des ondes élastiques de Rayleigh. Un récipient, contenant le liquide réactionnel, est plongé dans le premier liquide et par conduction, ce récipient est à son tour échauffé ainsi que son contenu. Cependant, l'inertie du système est assez grande. En effet, pour atteindre la température de 60°C dans le récipient, il faut environ 50 secondes avec une puissance appliquée à l'électrode de 34,3 dB_m, soit 2,7W. Nous verrons dans notre étude qu'une telle température est atteinte en seulement quelques secondes avec notre dispositif.

Dans ce chapitre, nous ferons dans un premier temps un rappel de notions de thermographie infrarouge. Nous verrons que l'étalonnage des corps avec lesquels nous travaillons est très important. Nous consacrerons ainsi une partie à la calibration des milieux et des matériaux avant de présenter le protocole expérimental qui nous permettra de recueillir

les températures ainsi que l'uniformité de la chaleur des gouttes. Nous exposerons ensuite les résultats et nous déterminerons les meilleures conditions expérimentales pour optimiser la température et l'uniformité. Nous montrerons que l'utilisation de transducteurs spécifiques unidirectionnels diminue la puissance électrique nécessaire pour atteindre une température spécifique et qu'un dispositif à base de transducteur enterré permet d'améliorer principalement l'uniformité de la chaleur des gouttes.

IV.B. La thermographie IR

Nous avons opté pour des mesures de température par l'intermédiaire de la thermographie infrarouge à l'aide d'une caméra thermique. D'après l'Association Française de Normalisation (AFNOR), cette technique permet d'obtenir, au moyen d'un appareillage approprié, l'image thermique d'une scène observée dans un domaine spectral de l'infrarouge. Cette solution nous offre deux principaux avantages:

- Une mesure sans contact : celle-ci permet d'éviter des interactions avec l'expérience réalisée contrairement aux techniques à contact type thermocouple qui peuvent perturber l'expérience et la mesure.
- La visualisation thermique d'une scène qui permet de cartographier la répartition de la température au sein du système (ici, la microgoutte échauffée).

La simple visualisation thermique d'une scène, sans mesure de température, s'effectue à l'aide d'un imageur thermique. La mesure de température par infrarouge peut être réalisée avec différents instruments :

- Un pyromètre pour la mesure de la température en un point ou une surface de quelques centaines de μm^2 maximum tel que l'a utilisé J.Kondoh.
- Une caméra thermique pour obtenir une image thermique ainsi que la répartition de la température.

La caméra thermique apporte ainsi un réel avantage pour observer la répartition de la chaleur au sein de la goutte en régime permanent. En régime transitoire, l'enregistrement de film permettra de comprendre l'évolution de l'échauffement de la goutte et de déterminer les constantes de temps d'échauffement et de refroidissement.

IV.B.1. Rayonnement infrarouge

Tout corps ou milieu dont la température est supérieure au zéro absolu émet un rayonnement infrarouge, rayonnement électromagnétique dont la longueur d'onde est supérieure à celle de la lumière et inférieure à celle des micro-ondes. L'œil humain n'est pas sensible aux rayonnements infrarouges. Dans notre cas, les gouttes échauffées par les ondes élastiques de surface vont émettre un rayonnement infrarouge que nous nommerons rayonnement infrarouge thermique. D'après la norme ISO 20473 :2007, l'infrarouge est divisé en trois catégories :

- L'infrarouge proche de $0,78 - 3 \mu\text{m}$
- L'infrarouge moyen de $3 - 5 \mu\text{m}$
- L'infrarouge lointain de $5 - 14 \mu\text{m}$

Cependant, cette classification n'est pas universelle. En effet, les limites, variant d'un domaine d'étude à un autre, sont liées à la longueur d'onde des émetteurs, des récepteurs

(détecteurs), ou aux bandes de transmission atmosphérique pour les détecteurs en altitude tels que ceux embarqués dans les hélicoptères ou les satellites. La seule bande inexploitable se situe entre 5,5 et 7,5 μm car l'observation infrarouge et la transmission sont quasiment impossibles puisque l'atmosphère est presque opaque dans cet intervalle spectral. La caméra thermique dont notre laboratoire dispose est une caméra de marque FLIR et de référence SC6500. La bande spectrale infrarouge de cette caméra est comprise entre 2,5 et 5,1 μm et se situe ainsi dans l'infrarouge moyen d'après la norme ISO précédente.

IV.B.2. Corps noir

Un corps noir est un objet idéal qui absorbe tous les rayonnements électromagnétiques qu'il reçoit sans en réfléchir ni en transmettre. La lumière, par exemple, étant un rayonnement électromagnétique, est totalement absorbée par un corps noir. Par ailleurs, un corps noir est un objet idéal dont le spectre d'absorption électromagnétique ne dépend que de sa température.

IV.B.2.1. Loi de Planck et loi de Wien

La luminance énergétique monochromatique L_λ^0 rayonnée par un corps noir à une température donnée en fonction de la longueur d'onde est définie par la loi de Planck :

$$L_\lambda^0 = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda k_b T}} - 1} \quad (\text{IV.1})$$

avec h la constante de Planck en $\text{J}\cdot\text{s}$, T la température en K , c la vitesse de la lumière dans le vide $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, k_b la constante de Boltzmann en $\text{J}\cdot\text{K}^{-1}$ et L_λ^0 en $\text{W}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{sr}^{-1}$. En intégrant la luminance énergétique monochromatique par rapport à un intervalle i de longueur d'onde telle que $i = [\lambda_{\min} ; \lambda_{\max}]$, on obtient la luminance énergétique L_i^0 du corps noir sur cet intervalle i :

$$L_i^0 = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} L_\lambda^0 d\lambda \quad (\text{IV.2})$$

Sur tout le spectre ($i = [0 ; +\infty]$), on obtient la luminance totale L_T^0 du corps noir :

$$L_T^0 = \frac{\sigma}{\pi} T^4 \quad (\text{IV.3})$$

avec $\sigma = 5,670400 \cdot 10^{-8} \text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-4}$ la constante de Stephan-Boltzmann et T la température en K . Le spectre électromagnétique de la luminance énergétique monochromatique se présente sous la forme de la Figure IV.1 en fonction de la longueur d'onde et pour plusieurs températures. Ce spectre nous informe d'abord que l'intensité rayonnée est d'autant plus grande que la température est élevée. Pour chaque courbe de

Planck, la luminance spectrale tend vers zéro pour des longueurs d'onde courtes, puis atteint rapidement un maximum à une longueur d'onde λ_{max} . Après avoir dépassé cette valeur, la luminance diminue et tend vers zéro. L'annulation de la dérivée de la formule de Planck par rapport à la longueur d'onde permet d'obtenir la position du maximum de chaque courbe. Son maximum est ainsi donné par la loi de Wien :

$$\lambda_{max} = \frac{2,898 \cdot 10^{-3}}{T} \quad (IV.4)$$

Elle nous indique que plus le corps noir est échauffé, plus son pic d'émission maximum se déplace vers les faibles longueurs d'onde. Elle traduit ainsi, mathématiquement, l'observation courante selon laquelle la couleur visible d'un corps rayonnant passe du rouge, à l'orange puis au jaune au fur et à mesure que sa température augmente. Pour exemple, à la température ambiante (300 K), le maximum de la luminance se situe à une longueur d'onde de $9,7\mu\text{m}$ dans l'infrarouge lointain alors que pour le soleil (5777 K), le maximum est à $0,5\mu\text{m}$, d'où sa couleur jaune.

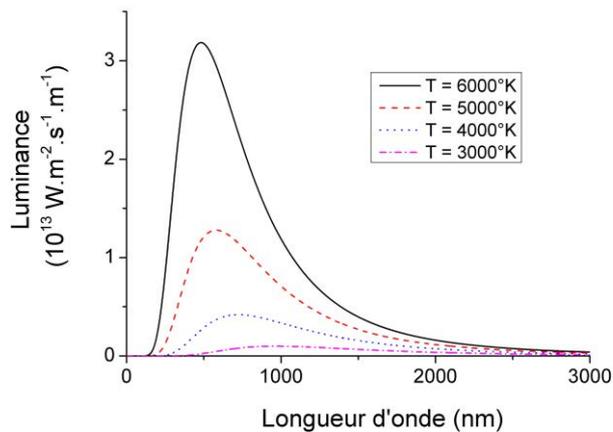


Figure IV.1 : Spectre électromagnétique d'un corps noir en fonction de la longueur d'onde et de la température.

IV.B.2.2. Loi de Lambert

La loi de Lambert nous indique que pour une source lumineuse orthotrope, c'est-à-dire une source dont la luminance est la même dans toutes les directions, dans le cas du corps noir, l'émittance monochromatique M (appelée aussi excitance monochromatique) est proportionnelle à la luminance monochromatique. Pour un corps noir, l'émittance monochromatique M_{λ}^0 est définie par :

$$M_{\lambda}^0 = \pi \cdot L_{\lambda}^0 \quad (IV.5)$$

IV.B.2.3. Loi de Stefan-Boltzmann

Le calcul donne, après intégration sur toutes les longueurs d'onde (de $\lambda = 0$ à $+\infty \mu\text{m}$) de la loi de Lambert, l'émittance totale M_T^0 en W.m^{-2} , c'est-à-dire la puissance totale du rayonnement émis par un corps noir. C'est la loi de Stephan-Boltzmann :

$$M_T^0 = \sigma T^4 \quad (\text{IV.6})$$

avec T la température en K. Cette formule nous indique que la puissance totale rayonnée d'un corps noir est proportionnelle à sa température à la puissance 4.

IV.B.2.4. Etalonnage des caméras thermiques

En théorie, un corps noir est une cavité fermée et isotherme. Sur ce principe, nous pouvons donc en obtenir une bonne approximation. En pratique, pour la calibration des caméras chez les constructeurs, le corps noir est un four très bien isolé et stabilisé en température. Il est équipé d'un trou de très petites dimensions considéré comme une source ponctuelle de photons de longueurs d'ondes couvrant la bande spectrale de la caméra.

La caméra est positionnée devant la source et on relève la relation effective entre la température connue de cette source de référence et la valeur du rayonnement (en volts ou niveaux numériques ou unités de rayonnement) que mesure la caméra lorsqu'elle observe cette source. Bien que comparable au corps noir, ce type de source n'en demeure pas un. En effet, par abus de langage, ces fours sont considérés comme des corps noirs. Pourtant, ils n'émettent des photons que dans une bande spectrale bien définie, ce qui est la définition d'un corps gris appartenant aux corps réels.

IV.B.3. Corps réels

Jusqu'ici, nous avons parlé de la radiation de corps noirs. Les corps et milieux réels ne correspondent pas au corps noir idéal et ne sont pas aussi rayonnants. En effet, il n'existe pas de matériau absorbant (ou émettant) toutes ondes électromagnétiques. Cependant, plusieurs matériaux s'approchent de ce comportement dans certains intervalles spectraux comme des peintures ou encore les fours de calibration de caméras thermiques vus auparavant.

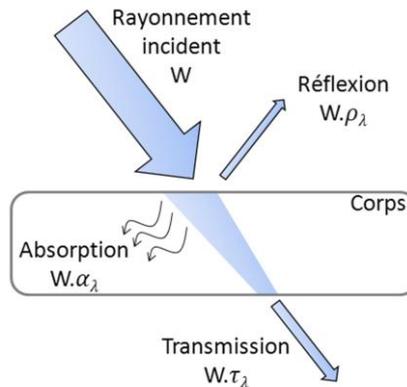


Figure IV.2 : Bilan énergétique de rayonnement

IV.B.3.1. Bilan énergétique

Lorsqu'un rayonnement électromagnétique incident d'énergie W atteint un corps ou un milieu réel, il se décompose en trois parties. Une fraction de son énergie peut être réfléchiée, transmise et/ou absorbée comme le montre la Figure IV.2. Le bilan énergétique s'exprime alors de la manière suivante :

$$W \cdot \rho_\lambda + W \cdot \tau_\lambda + W \cdot \alpha_\lambda = W \quad (\text{IV.7})$$

avec respectivement ρ_λ , τ_λ , et α_λ les coefficients de réflexion, transmission et absorption à la longueur d'onde λ . Cette équation peut être réduite comme suit:

$$\rho_\lambda + \tau_\lambda + \alpha_\lambda = 1 \quad (\text{IV.8})$$

Un corps opaque aux infrarouges à la longueur d'onde λ a un coefficient de transmission nul ce qui signifie $\rho_\lambda + \alpha_\lambda = 1$. Dans le cas où $\rho_\lambda = 1$, nous parlons de réflecteur parfait, lorsque $\tau_\lambda = 1$, de transmetteur parfait, et lorsque $\alpha_\lambda = 1$, d'un émetteur parfait, soit un corps noir.

IV.B.3.2. Emissivité et loi de Kirchhoff

Une autre loi importante pour décrire le comportement d'un milieu est la loi du rayonnement de Kirchhoff. Elle relie l'absorption et l'émission d'un corps à l'équilibre thermique. Considérons une onde électromagnétique incidente qui rencontre un corps réel. Selon le coefficient d'absorption, le corps absorbera une partie du rayonnement incident. Pour conserver l'équilibre thermodynamique, il doit restituer l'équivalent de l'énergie reçue. Ainsi, d'après la loi de Kirchhoff :

$$\alpha_\lambda = \varepsilon_\lambda \quad (\text{IV.9})$$

avec ε l'émissivité du corps ou du milieu réel. En thermographie, nous considérons que l'on observe les corps et milieux en phase d'équilibre thermodynamique. Ils émettent ainsi ε_λ . Cette loi indique qu'un corps ou un milieu absorbant les infrarouges les émet tout aussi bien. A partir de cette équation, pour un matériau opaque à la longueur d'onde λ ($\tau_\lambda = 0$), nous obtenons :

$$\rho_\lambda + \alpha_\lambda = \rho_\lambda + \varepsilon_\lambda = 1 \quad (\text{IV.10})$$

Remarque : Pour un corps noir dont les coefficients de transmission et de réflexion sont nuls, $\alpha = \varepsilon = 1$ quelle que soit la longueur d'onde.

Un corps réel n'émet qu'une fraction de ce qu'émettrait un corps noir porté à la même température. L'émissivité monochromatique d'un corps réel est donc définie par le rapport entre la luminance monochromatique L_λ (respectivement l'émittance monochromatique M_λ) de ce corps à la température T par la luminance (respectivement l'émittance) monochromatique d'un corps noir à la même température:

$$\varepsilon_\lambda = \frac{L_\lambda}{L_\lambda^0} = \frac{M_\lambda}{M_\lambda^0} \quad (\text{IV.11})$$

L'émissivité d'un corps réel sur un intervalle de longueur d'onde $i = [\lambda_{min} ; \lambda_{max}]$ est définie par l'intégrale de l'émissivité monochromatique sur cet intervalle :

$$\varepsilon_i = \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} \varepsilon_\lambda d\lambda = \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} \frac{L_\lambda}{L_\lambda^0} d\lambda = \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} \frac{M_\lambda}{M_\lambda^0} d\lambda \quad (\text{IV.12})$$

et l'émissivité totale ε_T d'un corps réel par l'intégrale sur tout le spectre ($i = [0 ; +\infty]$) :

$$\varepsilon_T = \int_0^{+\infty} \varepsilon_\lambda d\lambda = \int_0^{+\infty} \frac{L_\lambda}{L_\lambda^0} d\lambda = \int_0^{+\infty} \frac{M_\lambda}{M_\lambda^0} d\lambda \quad (\text{IV.13})$$

IV.B.3.3. Corps gris

Dans la réalité, il est possible de s'approcher du comportement des corps noirs mais seulement dans des bandes spectrales bien précises. Lorsqu'un matériau présente une émissivité inférieure à 1 et que celle-ci ne dépend pas de la longueur d'onde dans un intervalle spectral, il est appelé corps gris. La Figure IV.3 présente un exemple d'émissivité d'un corps gris, d'un corps noir et d'un corps quelconque en fonction d'un intervalle de longueur d'onde $[\lambda_{min} ; \lambda_{max}]$. Un corps noir admet une émissivité égale à l'unité quelle que soit la longueur d'onde. Le corps gris, comme défini, a une émissivité constante et inférieure à 1 (ici, 0,9) dans l'intervalle. Le corps quelconque a une émissivité qui dépend de la longueur d'onde comme

montré à la Figure IV.3. Des exemples de corps gris sont les fours d'étalonnage des caméras thermiques ou certaines peintures, hautement émissives, que nous présenterons et utiliserons plus tard. Dans le cas des corps gris et uniquement dans ce cas, la loi de Stefan-Boltzmann nous donnant l'émittance totale M_T^g devient :

$$M_T^g = \varepsilon^g M_T^0 = \varepsilon^g \sigma T^4 \quad (\text{IV.14})$$

avec ε^g l'émissivité du corps gris et la luminance totale L_T^g du corps gris sous la forme suivante :

$$L_T^g = \varepsilon^g \cdot L_T^0 = \varepsilon^g \cdot \frac{\sigma T^4}{\pi} \quad (\text{IV.15})$$

L'émissivité est donc une grandeur essentielle dans le domaine de la thermographie pour la mesure de température. Une bonne compréhension et une bonne calibration du processus sont ainsi nécessaires pour éviter des mesures incohérentes.

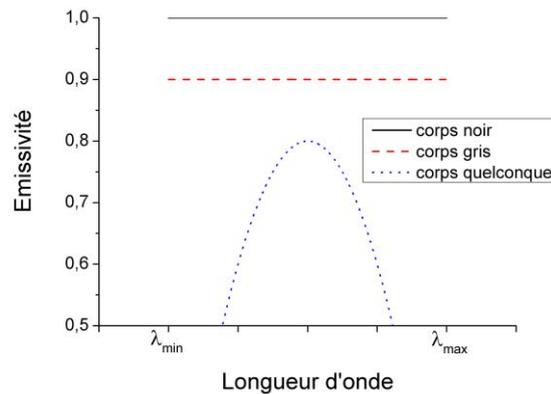


Figure IV.3 : Exemple d'émissivité d'un corps noir, gris et d'un corps quelconque

IV.C. Calibration des milieux et matériaux

Pour les mesures de température par infrarouge, la calibration du banc expérimental est très importante. En effet, comme nous l'avons vu précédemment, la détermination de l'émissivité des produits et matériaux utilisés est primordiale pour obtenir des mesures de température précises. Nous présenterons deux méthodes pour déterminer les émissivités et nous comparerons ensuite les résultats obtenus. Mais tout d'abord, présentons les liquides que nous utiliserons.

IV.C.1. Mélange visqueux

Nous avons montré, dans le second chapitre, que l'échauffement d'une goutte par des ondes élastiques de surface de type Rayleigh dépend de la viscosité du liquide. Le mélange de glycérol et d'eau déionisée à différentes concentrations massiques est bien connu pour obtenir des solutions présentant une large gamme de viscosité [4]. Nous avons ainsi préparé plusieurs solutions présentant des viscosités différentes pour l'étude de l'échauffement et de l'uniformité de l'échauffement. Nous avons réalisé des solutions de concentration [0 ; 40 ; 50 ; 60 ; 80 ; 85 ; 90 ; 95 ; 100]% massique de glycérol dans de l'eau déionisée ce qui nous donne des viscosités dynamiques respectives de [1,005 ; 3,72 ; 6 ; 10,8 ; 60,1 ; 109 ; 219 ; 523 ; 1410]mPa.s. Ces viscosités sont données à 20°C. Nous avons vérifié ces viscosités à l'aide d'un rhéomètre de marque Anton Paar et de référence RheolabQC. Les viscosités théoriques et les viscosités mesurées sont présentées à la Figure IV.4. Nous remarquons que les valeurs mesurées sont légèrement inférieures aux théoriques. En effet, la viscosité, avec ces mélanges binaires, diminue avec la température et les mesures ont été effectuées à 22°C ce qui peut expliquer ces écarts. De plus, l'erreur lors de la pesée de l'eau et du glycérol pour réaliser les mélanges ainsi que l'erreur de mesure du rhéomètre induisent une variation des résultats. Dans la suite, nous échaufferons des gouttes de ces mélanges par des ondes élastiques de surface. La viscosité de l'eau et du glycérol diminue avec la température, de façon bien plus marquée pour le glycérol. Dans les figures de la partie (IV.E), nous présenterons la température et l'uniformité de l'échauffement de gouttes en fonction de différents paramètres, tels que la

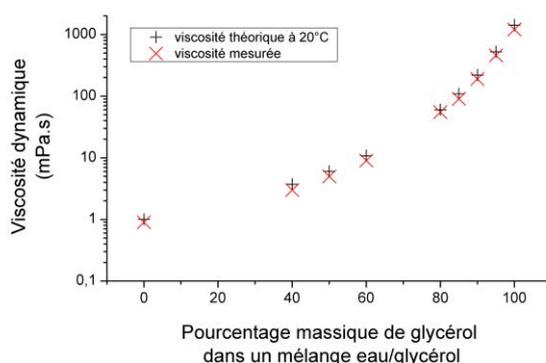


Figure IV.4 : Viscosités théoriques à 20°C et viscosités mesurées de mélanges eau/glycérol

fréquence des ondes élastiques, et pour chaque viscosité. Nous tenons à préciser dès maintenant que les viscosités, annotées en légende des figures, seront celles des différents mélanges considérés à 20°C.

IV.C.2. Calibration de l'émissivité

IV.C.2.1. Méthode « directe »

Une première méthode permettant de déterminer l'émissivité ε_1 d'un objet O_1 est standardisée par la norme ASTM E1933-99A. Cette technique repose sur quatre étapes :

- Nous appliquons sur une partie de l'objet O_1 un matériau hautement émissif tel qu'une peinture ou une bandelette adhésive d'émissivité connue que l'on nommera référence.
- Nous chauffons le tout et on suppose que les températures moyennes sur l'objet et sur la référence sont identiques.
- Nous mesurons la température de la référence T_{ref} à l'aide de la caméra thermique.
- Nous observons ensuite la température de l'objet O_1 et on adapte progressivement son émissivité jusqu'à ce que la température lue corresponde à la température de référence ($T_{objet} = T_{ref}$). Il suffit ensuite de relever l'émissivité de l'objet.

Pour cette technique, nous utilisons un corps gris, une peinture hautement émissive, dans la bande spectrale de la caméra. Il s'agit d'un revêtement du fabricant Nextel de référence Velvet-coating 811-21 qui présente un coefficient d'émissivité $\varepsilon_{ref} = 0,98$.

IV.C.2.2. Méthode « indirecte » : bilan des luminances

La seconde méthode consiste à réaliser le bilan des luminances. Comme nous l'avons vu précédemment, l'émissivité d'un objet ε_{obj} peut être déterminée en faisant le rapport, sur le même intervalle de longueur d'onde, de la luminance de l'objet L_{obj} à une certaine température par la luminance du corps noir à la même température (IV.12). La caméra thermique que nous utilisons permet de déterminer la luminance d'un objet sur l'intervalle spectral de la caméra, $[2,5 - 5,1]\mu\text{m}$. Il nous suffit de calculer la luminance du corps noir sur ce même intervalle spectral pour finalement obtenir l'émissivité de l'objet. La luminance vue par la caméra thermique L' s'exprime de la manière suivante :

$$L' = \varepsilon_{obj}L_{obj} + (1 - \varepsilon_{obj})L_{env} \quad (\text{IV.16})$$

sachant que l'émissivité de l'objet est ε_{obj} sur l'intervalle $[2.5 ; 5,1]\mu\text{m}$, la luminance de l'objet est L_{obj} , et la luminance de l'environnement est L_{env} . Les différents termes s'expliquent comme suit :

- $\varepsilon_{obj}L_{obj}$: Emission ε_{obj} de l'objet L_{obj}
- $(1 - \varepsilon_{obj})L_{env}$: Réflexion et transmission sur l'objet $(1 - \varepsilon_{obj}) = \rho_{obj} + \tau_{obj}$ de l'environnement L_{env}

avec respectivement ρ_{obj} et τ_{obj} les coefficients de réflexion et de transmission de l'objet. Considérons deux objets à la même température T_{ref} observés à la caméra thermique. Nous cherchons l'émissivité ε_{obj_1} de l'objet 1 sachant que l'on connaît le second ε_{obj_2} . Nous avons :

$$L'_1 = \varepsilon_{obj_1}L_{obj_1} + (1 - \varepsilon_{obj_1})L_{env} \quad (\text{IV.17})$$

$$L'_2 = \varepsilon_{obj_2}L_{obj_2} + (1 - \varepsilon_{obj_2})L_{env} \quad (\text{IV.18})$$

Les deux objets étant à la même température, il vient $L_{obj_1} = L_{obj_2} = L_{ref}$ d'où :

$$L'_1 = \varepsilon_{obj_1}L_{ref} + (1 - \varepsilon_{obj_1})L_{env} \quad (\text{IV.19})$$

$$L'_2 = \varepsilon_{obj_2}L_{ref} + (1 - \varepsilon_{obj_2})L_{env} \quad (\text{IV.20})$$

Par substitution de (IV.19) dans (IV.20), nous en déduisons ε_{obj_1} :

$$\varepsilon_{obj_1} = \varepsilon_{obj_2} \left(\frac{L'_1 - L_{env}}{L'_2 - L_{env}} \right) \quad (\text{IV.21})$$

En utilisant le corps gris à émissivité connue et la caméra thermique pour déterminer L'_1 , L'_2 et L_{env} , on peut obtenir l'émissivité de l'objet.

IV.C.2.3. Protocole expérimental

Ces deux méthodes sont utilisées pour déterminer l'émissivité des matériaux de cette étude à savoir le substrat de niobate de lithium et les différents liquides. Pour le corps gris, nous utiliserons une solution différente, par rapport à la méthode que nous allons présenter, que nous verrons dans la partie suivante. Dans tous les cas, les matériaux seront posés sur un cylindre en cuivre de 3mm d'épaisseur, le tout placé sur une plaque chauffante connectée à une alimentation continue TDK-Lambda de référence GEN1500W. La plaque chauffante ne générant pas une température parfaitement uniforme sur toute sa surface, nous utilisons le

cylindre en cuivre pour limiter les variations de température. En augmentant la tension d'alimentation, la plaque chauffante échauffe les matériaux. A l'aide de la caméra thermique et d'un ordinateur, nous déterminons l'émissivité par les deux méthodes présentées précédemment. Par ailleurs, nous plaçons la caméra thermique, la plaque chauffante et les échantillons dans une enceinte fermée pour éviter les perturbations extérieures, telles que l'émission infrarouge du corps humain.

La température de la plaque chauffante est contrôlée par un ordinateur avec le logiciel LabView et une liaison GPIB. La température est obtenue par un thermocouple K relié à un multimètre Keithley 6517A. Un algorithme PID, implémenté sous un programme LabView, permet de commander l'alimentation continue pour réguler et stabiliser la température.

IV.C.3. Emissivité des matériaux

IV.C.3.1. Le corps gris

Dans un premier temps, nous avons vérifié que l'émissivité du corps gris correspond à la valeur donnée par le fournisseur. Pour cela, une couche de ce revêtement est déposée sur un substrat de niobate de lithium. Une sonde PT100 est plaquée et collée sur le corps gris à l'aide d'une microgoutte de laque d'argent de 1µL. Après séchage, le tout est placé sur la plaque chauffante sous la caméra thermique. La sonde PT100 est reliée à un multimètre Keithley de référence 34401A afin de relever sa résistance. L'équation de la résistance en fonction de la température est la suivante :

$$R_T = R_0(1 + A.T + B.T^2 - C(T - 100)T^3) \quad (IV.22)$$

avec T la température, R_T la résistance de la sonde à la température T, R_0 la valeur de la résistance lorsque la température est nulle (ici, $R_0 = 100\Omega$), $A = 3,9083.10^{-3}$, $B = -5,775.10^{-7}$ et $C = -4,18301.10^{-12}$ d'après la norme DIN 43760 (IEC 751). La température est obtenue en transformant l'équation précédente mais uniquement pour des températures supérieures à 0°C :

$$T = \frac{-A + \sqrt{A^2 - 4B\left(1 - \frac{R_T}{R_0}\right)}}{2B} \quad (IV.23)$$

Le dispositif est chauffé en suivant le protocole expérimental IV.C.2.3. Nous relevons la température à l'aide de la sonde PT100 et nous observons la température moyenne d'une zone de 600 pixels sur le corps gris proche de la sonde avec la caméra thermique. Nous considérons que la sonde et le revêtement sont à la même température. Nous ajustons ensuite l'émissivité de la zone du corps gris pour s'approcher de la température relevée à l'aide de la sonde. Nous obtenons ainsi la courbe de la Figure IV.5 avec l'émissivité ajustée du

corps gris en fonction de la température relevée par la sonde. Lorsque la température est supérieure à 40°C, l'émissivité est fixe et vaut 0,98 comme l'indique le fabricant. En dessous de ce seuil, l'émissivité varie entre 0,98 et 0,995. Nous pouvons attribuer ce phénomène à l'environnement. En effet, celui-ci rayonne et lorsque les mesures de température sont proches de celle de l'environnement, ce rayonnement influe sur les mesures. Une possibilité serait de travailler dans une salle climatisée de température inférieure aux mesures réalisées. Avec des matériaux très émissifs, tel que ce revêtement, l'erreur est faible puisque le matériau ne réfléchit et ne transfère que très peu d'énergie. Cependant, pour des matériaux faiblement émissifs, l'erreur peut devenir importante. Il est donc important d'avoir des matériaux très émissifs pour éviter des erreurs de mesures. Pour la suite de l'étude, nous choisirons une émissivité de 0,98 pour le corps gris.

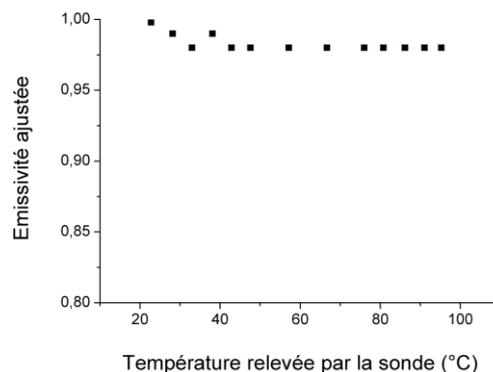


Figure IV.5 : Emissivité du corps gris en fonction de la température relevée par la sonde PT100

IV.C.3.2. Substrat et mélanges visqueux

Nous allons maintenant utiliser les deux méthodes présentées au paragraphe IV.C.3 pour déterminer les émissivités du substrat de niobate de lithium et des mélanges visqueux. Pour cela, une partie d'un substrat de niobate de lithium est couvert du corps gris et des gouttes de 10µL des différents mélanges visqueux sont posées dessus. Le tout est placé sur la plaque chauffante avec la caméra au-dessus. Les températures relevées sont des moyennes obtenues pour 300 pixels de chaque goutte et 600 pixels pour le substrat de Niobate de Lithium. L'émissivité du substrat est présentée à la Figure IV.6 en fonction de la température du corps gris. Nous observons qu'au-delà de 52°C, les deux méthodes convergent et l'émissivité du niobate de lithium vaut 0,78. En dessous de cette température, l'émissivité varie entre 0,78 et 1. Ceci confirme les observations précédentes à savoir qu'à faible température, l'environnement perturbe les mesures. Ce matériau étant moins émissif que le corps gris, il réfléchit et transmet une partie du rayonnement de l'environnement ce qui recule le seuil de température à partir duquel l'émissivité est stable. Les erreurs de mesure sont donc plus importantes aux faibles températures. Dans la suite de l'étude, nous choisirons une émissivité de 0,78 pour des mesures de température sur le substrat de niobate de lithium supérieures à 52°C. Concernant les mélanges visqueux, des gouttes de 10µL de chaque

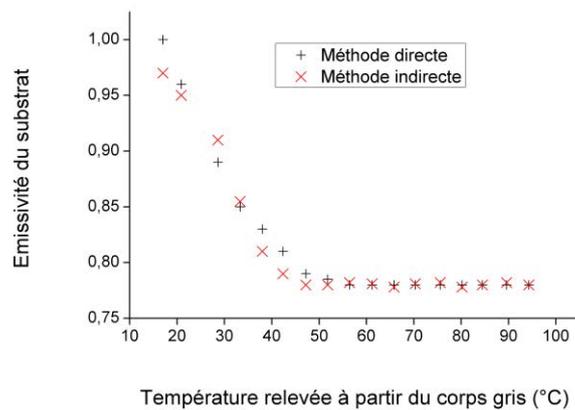


Figure IV.6 : Emissivité du substrat en fonction de la température relevée sur le corps gris

solution sont déposées sur le corps gris. Les émissivités sont déterminées et présentées à la Figure I.7 a) pour la méthode directe et à la Figure I.7 b) pour la méthode indirecte. Comme nous pouvons le constater, les deux méthodes convergent vers les mêmes émissivités pour chaque mélange. Comme précédemment, nous remarquons que l'environnement perturbe les mesures lorsque la température est inférieure à 42,7°C. Au-delà de ce seuil, les émissivités se stabilisent pour toutes les solutions. Il est intéressant de noter que les mélanges visqueux ont des émissivités comprises entre le corps gris et le substrat et que le seuil, à partir duquel les émissivités se stabilisent, se trouvent aussi entre ceux des deux matériaux. Par ailleurs, contrairement aux autres relevés, nous observons une certaine fluctuation de l'émissivité autour de la valeur moyenne. Ce phénomène peut être attribué à la convection dans les liquides qui, à ces températures, joue un rôle important. En effet, des écoulements s'instaurent au sein de la goutte et apparaissent des zones plus ou moins chaudes et donc plus ou moins rayonnantes. Pour compenser ces différences, nous sommes contraints d'ajuster l'émissivité. Dans la suite de l'étude, nous choisirons les émissivités présentées dans le Tableau IV.1 pour les mélanges eau/glycérol correspondants.

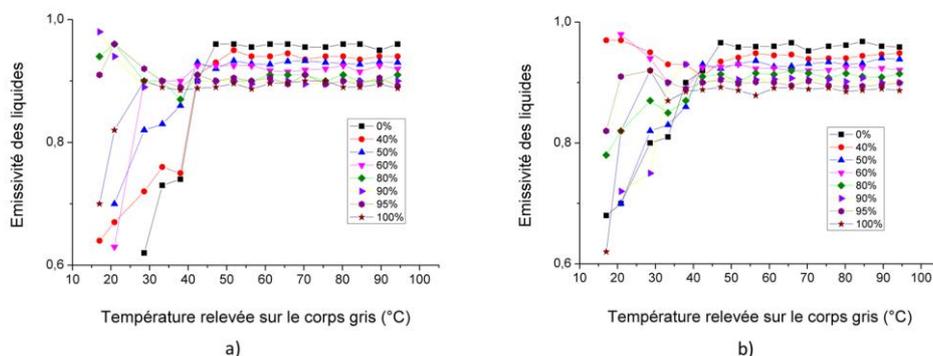


Figure IV.7 : Emissivité du substrat en fonction de la température relevée sur le corps gris

Concentration massique de glycérol dans l'eau	0%	40%	50%	60%	80%	90%	95%	100%
Emissivité	0,96	0,94	0,93	0,92	0,91	0,9	0,895	0,89

Tableau IV.1 : Emissivités des mélanges eau/glycérol

IV.D. Protocole expérimental

IV.D.1. Mesure de température

Pour toutes les expériences de cette partie, nous utiliserons le même protocole expérimental. Une onde élastique de surface est générée par une électrode interdigitée réalisée sur un substrat piézoélectrique de niobate de lithium de coupe $Y+128^\circ$, de direction de propagation X . Celle-ci est excitée par un générateur de signal connecté à un amplificateur. Un coupleur directionnel et un puissance-mètre sont utilisés pour déterminer la puissance transmise à l'électrode. Le dispositif est recouvert d'une couche de polymère P(VFD-TrFe) pour maintenir la goutte lors de l'échauffement comme présenté au chapitre précédent. La caméra thermique est placée au-dessus de l'échantillon et le logiciel propriétaire nous informe de la température et de la distribution de chaleur de la goutte. La température moyenne de chaque goutte est la moyenne de la température d'au moins 200 pixels des images observées à la caméra thermique. Le schéma du protocole expérimental est présenté à la Figure IV.8.

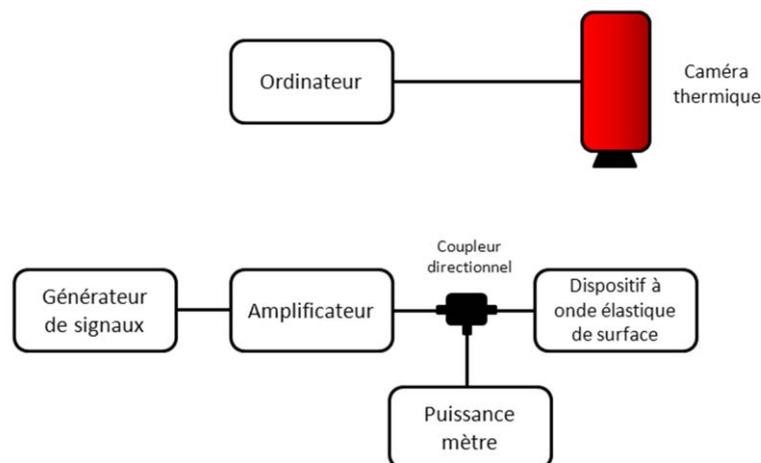


Figure IV.8 : Schéma du protocole expérimental

IV.D.2. Images observées

Les images infrarouges observées se présentent telles que montrées à la Figure IV.9. Le design des électrodes est réalisé de manière à pouvoir utiliser des pointes de connexion RF de $1500\mu\text{m}$ d'espacement pour assurer la connexion avec les équipements d'excitation et de caractérisation. Ce design permet ainsi une caractérisation rapide et évite les connexions par « wire-bonding » parfois contraignantes. Nous remarquons que la température de la goutte n'est pas parfaitement uniforme (Figure IV.9 et Figure IV.10). En effet, lorsque l'onde atteint le liquide, elle est rapidement atténuée. Cette atténuation entraîne un échauffement localisé du liquide et provoque un écoulement interne. Ce dernier permet de propager et d'uniformiser la chaleur dans la goutte et crée deux vortex symétriques. Cet effet est remarquable sur la Figure IV.10. Pour toutes les images infrarouges présentées dans ce manuscrit, les échelles de

température ne sont pas illustrées volontairement. En effet, la caméra présente une échelle de température valable pour un corps noir. Or, bien évidemment, les gouttes observées n'en sont pas. Nous avons choisi des images en dégradé de couleurs, du bleu sombre, pour les faibles températures, au violet, pour les températures les plus hautes.

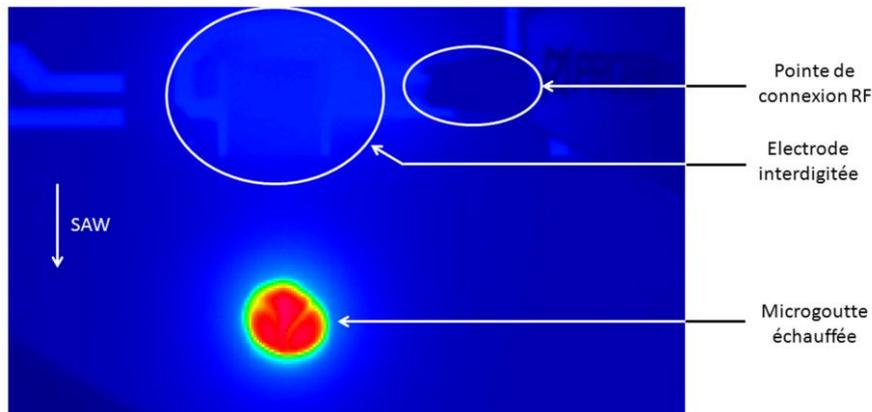


Figure IV.9 : Image infrarouge du dispositif.

IV.D.3. Uniformité de la température

L'uniformité de la température sera interprétée par l'écart type de la température de tous les pixels de la goutte. En effet, l'écart type de la température traduit la dispersion de la température autour de la moyenne. Plus l'écart type est faible, plus les valeurs de la température sont regroupées autour de la température moyenne et meilleure est l'uniformité. La moyenne et l'écart type permettent de calculer un intervalle dans lequel se trouve une majorité de la population. Si la moyenne est m et l'écart type σ , 95% de la population se trouve dans l'intervalle $[m-1,96 \sigma ; m+1,96 \sigma]$. Dans cette partie, nous relèverons ainsi l'écart type et nous essayerons d'obtenir des valeurs aussi faibles que possible.

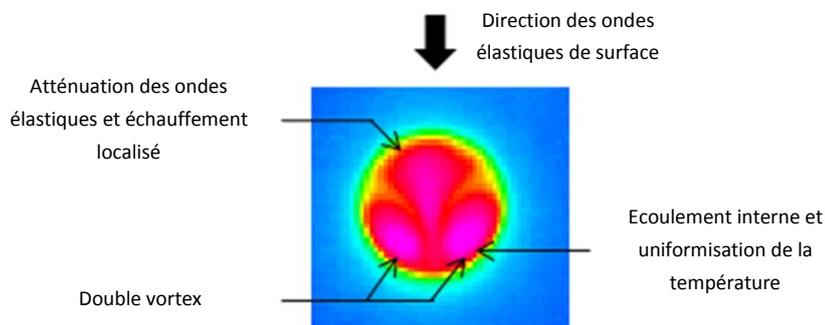


Figure IV.10 : Image infrarouge d'une microgoutte échauffée par des ondes élastiques de Rayleigh.

IV.D.4. Erreurs de mesure

Toute mesure réalisée à l'aide d'un ou plusieurs instruments de mesure comporte des erreurs. Lors des mesures de températures avec la caméra thermique, nous pouvons évaluer deux principales sources d'erreurs :

- Le détecteur de la caméra
- L'émissivité de l'objet observé

Le constructeur de la caméra nous informe que le détecteur a une sensibilité de 30mK, soit une source d'erreur très faible. L'émissivité, par contre, joue un rôle plus important. En observant les courbes de calibrations de la caméra, nous pouvons évaluer l'erreur de mesure commise. Nous allons nous placer dans le cas de l'objet le plus défavorable que nous observerons, c'est-à-dire le moins émissif : le glycérol ($\varepsilon = 0,89$). En chauffant le liquide à 99°C et en considérant une erreur sur l'émissivité de 0,03, l'erreur de mesure de la température est de plus ou moins 1,4°C. A plus faible température, l'erreur est moins importante. Cette erreur de mesure ajoutée à la sensibilité de la caméra, nous obtenons une erreur totale de 1,44% à 99°. Les mesures suivantes d'écart type, traduisant l'uniformité de la température dans la goutte, et de température seront donc à considérer avec une erreur de 1,44%.

IV.E. Résultats

Dans cette partie, nous nous intéresserons à l'élévation de température et principalement à l'uniformité de la chaleur de la goutte échauffée par les ondes élastiques. Nous diviserons cette partie en deux sous parties. La première concernera l'échauffement « classique » des gouttes. Cela sous-entend qu'elles seront déposées à quelques millimètres ou centimètres devant le transducteur. Nous confirmerons les températures atteintes par les précédentes études et nous proposerons des solutions afin de réduire l'énergie nécessaire à l'échauffement de la goutte. Nous verrons qu'un design spécial des électrodes permet de réduire les puissances mises en jeu. Nous observerons l'uniformité de la température en fonction de différentes conditions expérimentales et nous déterminerons celles pour lesquelles l'uniformité est la meilleure. Dans la seconde partie, nous proposerons un nouveau dispositif optimisant le transfert d'énergie et limitant les pertes acoustiques : les gouttes seront placées directement sur les électrodes. Nous constaterons le gain apporté et nous déterminerons l'uniformité avant de conclure sur les performances de ce type de dispositifs.

IV.E.1. Dispositifs « classiques »

IV.E.1.1. Réalisation des dispositifs

Dans cette partie, nous avons développé différents dispositifs à ondes élastiques de surface. Comme matériau piézoélectrique, nous utiliserons des substrats de Niobate de Lithium de coupe Y+128° orientés pour générer des ondes élastiques de Rayleigh suivant l'axe X. Les dispositifs sont réalisés en salle blanche de classe 1000. La couche métallique est une couche d'aluminium déposée par pulvérisation cathodique (Alliance Concept AC 450) avec les conditions expérimentales suivantes :

Débit Argon	Pression	Puissance DC	Température	Temps
16 sccm	3.10-3mbar	100W	Ambiante	100s

Tableau IV.2 : Conditions expérimentales pour le dépôt de la couche d'aluminium par pulvérisation cathodique

Nous obtenons une couche d'épaisseur 100nm. Ensuite, une résine photosensible (S1813) est déposée par spin-coating à une vitesse de 7000rpm pendant 90s. Le tout est ensuite recuit à 115°C pendant 60s. La résine est structurée par photolithographie telle que présentée au premier chapitre par un équipement de marque Süss Microtec et de référence MA750. Le masque de lithographie est plaqué contre le substrat et une lampe à mercure insole la résine pendant 4s. La résine insolée est dissoute par le développeur MF319 pendant 40s. Le substrat est ensuite nettoyé avec de l'eau déionisée avant d'être séché sous flux d'azote. La couche d'aluminium est enfin gravée par une solution de $H_2NO_3-H_3PO_4-H_2O$ pendant 180s. L'échantillon est ensuite plongé dans de l'eau déionisée puis séché sous flux d'azote.

Nous obtenons ainsi des dispositifs avec différentes propriétés. Plusieurs longueurs sont obtenues ce qui nous permet d'exciter différentes fréquences et d'étudier le comportement de l'échauffement en fonction de la fréquence. Le design des transducteurs change aussi. En effet, nous verrons qu'il est possible de diminuer significativement la puissance transmise aux électrodes grâce à des transducteurs dits unidirectionnels.

IV.E.1.2. Types de transducteur

Nous développerons ainsi deux types de transducteurs. Les classiques, dits bidirectionnels, sont constitués de deux électrodes par longueur d'onde et chaque électrode consécutive est reliée au potentiel inverse (Figure IV.11 a). Ce type de transducteur, de par sa structure, est bidirectionnel, c'est-à-dire qu'il émet de l'énergie dans les deux sens (Figure IV.11 a). L'énergie mécanique, générée par les transducteurs excités par un signal électrique, est divisée en deux parties égales se propageant de chaque côté du transducteur. La moitié de l'énergie est donc perdue, l'autre moitié étant dirigée vers le transducteur de sortie dans le cas d'une ligne à retard, ou plutôt dans notre application, vers la microgoutte (Figure IV.11 a). En termes de puissance, cela signifie que nous perdons 3dB. Comme le présente la Figure IV.11 b), la puissance utile et la puissance perdue sont égales à la puissance injectée à l'électrode abaissée de 3dB [5]. Récupérer ces trois dB est donc un des objectifs des transducteurs unidirectionnels. Pour cela, des électrodes intermédiaires sont insérées dans le design comme le montre la Figure IV.12. Ces nouvelles électrodes permettent des réflexions internes et confèrent une propriété unidirectionnelle au transducteur. Nous avons choisi des transducteurs unidirectionnels de type EWC (Electrode Width Control) où, sur une longueur d'onde, se trouvent trois électrodes dont deux reliées au même potentiel (Figure IV.12).

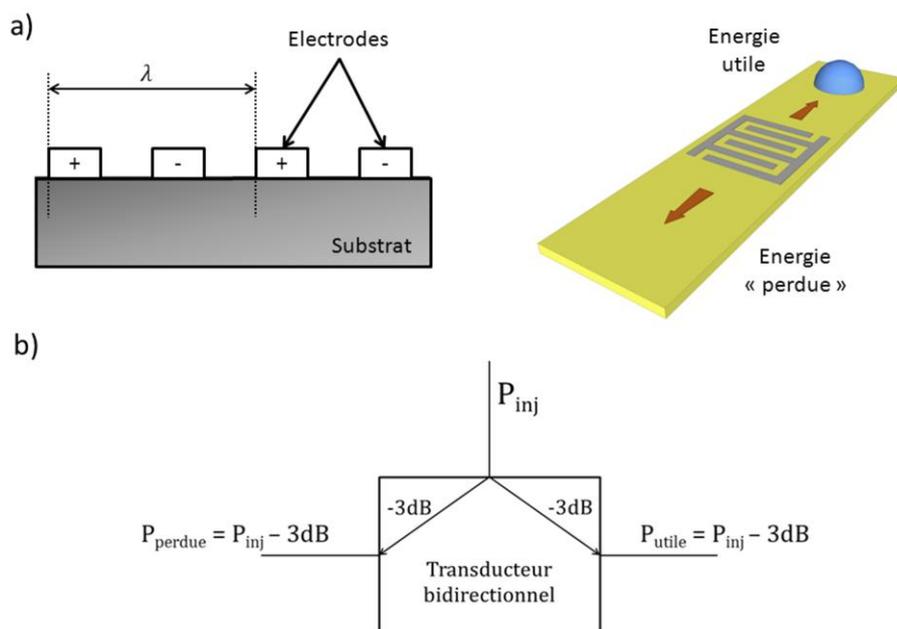


Figure IV.11 : Représentation d'un transducteur classique bidirectionnel en a) et bilan des puissances en b).

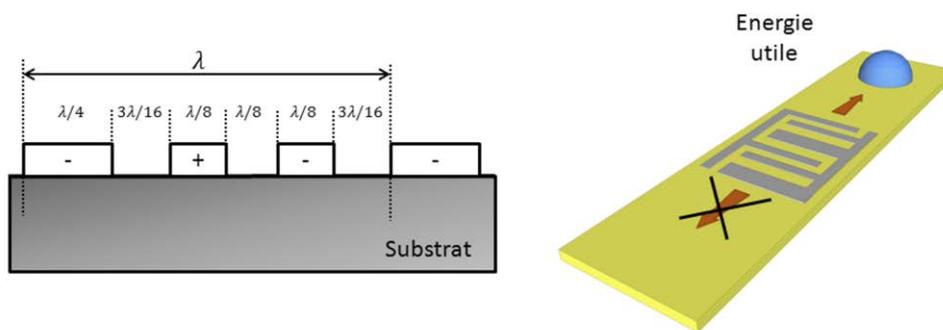


Figure IV.12 : Représentation d'un transducteur unidirectionnel de type EWC

D'autres concepts existent tels que des transducteurs Hanma, qui porte le nom du premier auteur à avoir présenté un SPUDT [6], DART (Distributed Acoustical Reflection Transducer), D-SPUDT (Dithered Single Phase Unidirectionnal Transducer)... Le choix de l'un ou de l'autre relève plus de considérations personnelles que des performances, très voisines [5].

Les SPUDTs offrent aussi d'autres propriétés telles que la réduction des réflexions comme le triple transit [6]. Dans notre application, le récepteur n'étant pas une électrode mais un liquide, la réflexion du triple transit est bien plus faible et ne jouera pas un rôle fondamental dans la réponse fréquentielle des dispositifs. Rappelons néanmoins que le triple transit est à la base de la détection de microgoutte par écho [7] [8].

IV.E.1.3. Echauffement des gouttes

Les différentes gouttes sont placées à environ 10mm des transducteurs. L'échauffement au sein de la goutte est tel que présenté aux Figure IV.9 et Figure IV.10. Nous observons la température en fonction des différentes conditions expérimentales comme la puissance électrique injectée à l'électrode P_{inj} et la viscosité des différents liquides. Dans cette partie, la puissance sera exprimée soit en Watt, soit en dB_m en fonction de l'information que nous souhaitons présenter.

IV.E.1.3.1. Observations temporelles

Dans un premier temps, nous présentons l'évolution temporelle de la température en fonction de différentes puissances injectées à l'électrode pour une goutte de $10\mu L$ et de viscosité $512mPa.s$ (Figure IV.13). La fréquence de résonance du dispositif est $39,213MHz$. L'irradiation commence à partir de la douzième seconde environ et nous observons une période de transition entre 10 et 20 secondes avant que la température ne se stabilise quelle que soit la puissance injectée à l'électrode. L'évolution temporelle pour les autres liquides de différentes viscosités correspond à l'allure de ces courbes. L'énergie de l'onde est directement proportionnelle à la puissance injectée à l'électrode. Par conséquent, en augmentant la puissance injectée, l'énergie mécanique véhiculée par l'onde augmente ce qui induit l'augmentation de la température de la goutte comme le montre la Figure IV.13.

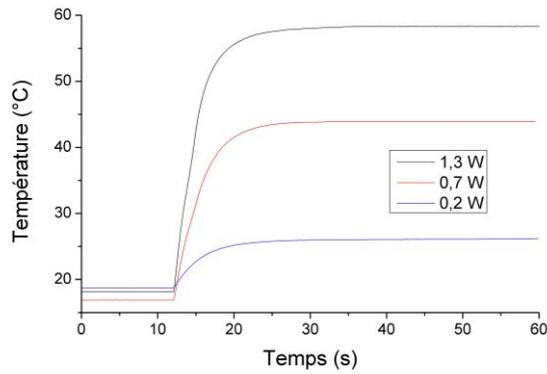


Figure IV.13 : Représentation temporelle de l'échauffement d'une goutte de 10 μ L par des ondes élastiques de surface de Rayleigh

IV.E.1.3.2. Effet de la viscosité

La viscosité joue un rôle important pour l'échauffement de goutte par onde élastique de surface. Nous observons la température moyenne de la goutte en fonction de la puissance injectée et de la viscosité. Le volume des microgouttes est 10 μ L et la température est relevée après 30s d'irradiation lorsqu'elle est stable. Nous excitions une onde de Rayleigh à partir d'un transducteur bidirectionnel à la fréquence de résonance de 39,213MHz. Comme dans les autres études, nous observons, Figure IV.14, que quelle que soit la viscosité, la température augmente avec la puissance injectée et que la température moyenne des gouttes est d'autant plus grande que la viscosité croît. En effet, les ondes de Rayleigh s'atténuent à l'interface entre le substrat et le liquide. Elles cèdent de l'énergie à la goutte sous forme d'onde longitudinale. Ces dernières se propagent ensuite dans la goutte et les pertes par propagation sont d'autant plus grandes que la viscosité du liquide augmente. Cette énergie dissipée par ces ondes longitudinales dans le liquide par frottement visqueux sera donc disponible pour échauffer la goutte [1]. Pour l'eau, de viscosité 1,005mPa.s, son comportement devient instable pour des

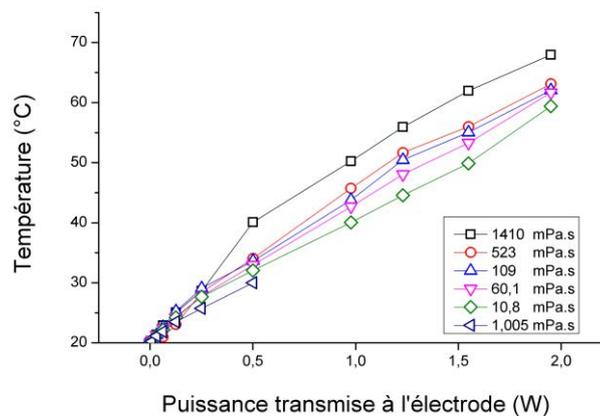


Figure IV.14 : Echauffement de microgoutte de 10 μ L en fonction de la puissance injectée au transducteur bidirectionnel pour des liquides de différentes viscosités avec une fréquence de l'onde élastiques de surface de 39,213MHz.

puissances supérieures à 0,5W. En effet, la force, générée par l'atténuation des ondes élastiques dans la goutte, provoque une déformation asymétrique de celle-ci. De plus, l'écoulement interne, induisant de fortes vibrations de la surface libre de la goutte, et l'évaporation de liquide rendent les mesures difficilement exploitables.

IV.E.1.3.3. Effet de la fréquence

Nous avons observé l'effet de la fréquence de l'onde élastique de surface sur l'échauffement de gouttes de 10 μ L de différentes viscosités (Figure IV.15). Nous avons développé quatre dispositifs de longueur d'onde 200, 100, 50 et 25 μ m correspondant respectivement, aux fréquences de 19,561, 39,193, 79,075 et 158,274MHz. Pour plus de simplicité, nous parlerons des fréquences suivantes : 20, 40, 80 et 160MHz. La puissance injectée à l'électrode est fixée à 1,5W (31,75dBm) et nous relevons les températures après 20 secondes d'irradiations. Nous avons effectué cinq fois les mesures et calculé les températures moyennes. Nous observons, sur la Figure IV.15, qu'à puissance et fréquence fixes, la température de la goutte augmente avec la viscosité comme nous l'avons remarqué précédemment (Figure IV.14). Nous remarquons aussi que quelle que soit la viscosité, la température diminue avec l'augmentation de la fréquence. Entre 20 et 40MHz, la différence de température est faible. Elle s'abaisse de 2,9°C au maximum. Cependant, en excitant une onde à 80MHz, la température chute de 9°C en moyenne et continue de s'abaisser à 160MHz. Des images infrarouges de l'échauffement des gouttes sont présentées à la Figure IV.16 pour les quatre fréquences après 20 secondes d'irradiation. Nous observons que l'échauffement est de plus en plus localisé avec l'élévation de la fréquence des ondes élastiques de surface. Ceci nous indique que les ondes sont d'autant plus atténuées à l'interface liquide/solide que la fréquence augmente. En effet, comme nous l'avons vu au second chapitre, le coefficient d'atténuation de l'onde à l'interface solide/liquide est inversement proportionnel à la longueur d'onde, soit proportionnel à la fréquence :

$$\alpha_L = \frac{1}{\lambda} \frac{\rho_L c_L}{\rho_S c_S} = \frac{f}{c_S} \frac{\rho_L c_L}{\rho_S c_S} \quad (IV.24)$$

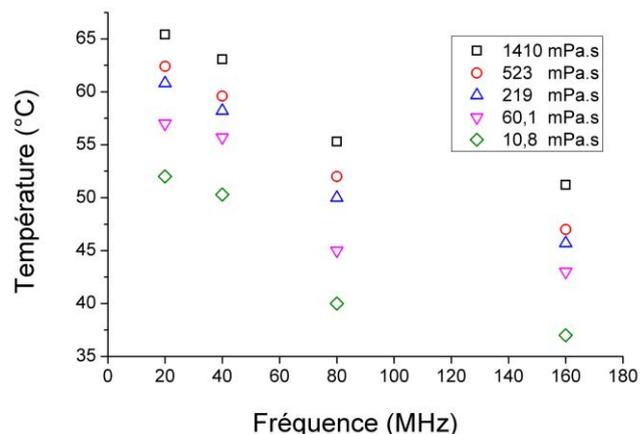


Figure IV.15 : Echauffement de microgouttes de 10 μ L en fonction de la fréquence de l'onde élastique de Rayleigh pour des liquides de différentes viscosités et une puissance injectée au transducteur de 1,5W.

Pour les quatre fréquences considérées [20-40-80-160MHz], les coefficients d'atténuation sont respectivement [618-1237-2475-4950]m⁻¹. Nous pouvons déduire que 95% de l'énergie des ondes élastiques est cédée après un parcours à l'interface solide/liquide équivalent à $1/3\alpha$ (II.B.2.3), soit respectivement [4,8-2,42-1,21-0,61]mm avec du glycérol. En augmentant la fréquence, le coefficient d'absorption augmente et l'onde s'atténue de plus en plus rapidement à l'interface solide/liquide.

De plus, il est nécessaire de préciser qu'après 20 secondes d'irradiation, les gouttes de 10µl échauffées par des ondes de fréquence faible (20 et 40MHz sur la Figure IV.16) ne sont pas dans le même état thermodynamique que les deux autres (80 et 160MHz). A 20 et 40MHz, les ondes se propagent plus loin à l'interface solide/liquide, et induisent un écoulement dans tout le volume de la goutte. La chaleur se propage alors principalement par convection forcée et l'équilibre thermodynamique est atteint en quelques secondes. A 80 et 160MHz, les ondes élastiques sont atténuées plus rapidement et l'écoulement n'intervient que dans une partie du volume de la goutte. L'échauffement se propage alors par conduction, principalement à 160MHz. Des durées longues, de plusieurs minutes, sont alors nécessaires pour atteindre un état thermodynamique stable. Pour le type d'application que nous ciblons, l'équilibre thermodynamique doit être atteint rapidement. Nous préférons alors des dispositifs à ondes élastiques de surfaces de fréquence faible (20 ou 40 MHz) pour échauffer des gouttes de 10µl.

En observant l'image infrarouge de la Figure IV.16 à la fréquence de 160MHz, le volume de la zone échauffée, par convection, est de l'ordre du microlitre. En diminuant le volume de la goutte à l'ordre de grandeur cité précédemment, il serait possible de favoriser le transfert de chaleur par convection forcée. Ainsi, l'équilibre thermodynamique serait atteint plus rapidement. Il existe donc une relation entre la fréquence de l'onde élastique, le volume de la goutte et le régime de transfert de chaleur. Une étude plus approfondie, en cours de réalisation dans notre équipe, nous permettra de mieux comprendre ces phénomènes.

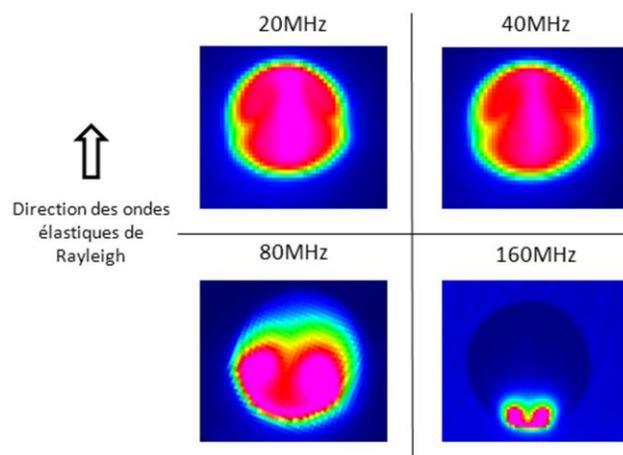


Figure IV.16 : Images infrarouges de gouttes de glycérol de 10µL positionnées à 10mm des transducteurs et échauffées par des ondes élastiques de Rayleigh dont la fréquence varie de 20MHz à 160MHz. La puissance injectée aux différents transducteurs est fixée à 1,5W. Les images sont une vue de dessus capturées après 20 secondes d'irradiation.

Les images de la Figure IV.16 nous révèlent des zones plus ou moins chaudes au sein de la goutte. Pour quantifier ces différences de température, nous allons relever l'écart type de la température, représentative de l'uniformité.

IV.E.1.4. Uniformité de la température

L'écart type de la température, traduisant l'uniformité de l'échauffement de la goutte, est relevé en fonction de différentes conditions expérimentales. Pour observer l'uniformité, et de manière à avoir de grandes variations de l'écart type, nous utiliserons des gouttes de glycérol. C'est avec ce liquide que les ondes élastiques sont atténuées le plus rapidement, d'après les équations (II.43), et que la convection forcée est la moins intense [1]. La chaleur est alors moins bien répartie et nous observerons, ainsi, les plus grandes variations d'uniformité (cf IV.E.2.5). Nous étudierons l'effet de la puissance, de la fréquence ainsi que du volume de la goutte avant de conclure quant aux meilleures conditions expérimentales.

IV.E.1.4.1. Effet de la puissance et de la fréquence

Nous avons reporté, sur la Figure IV.17, l'écart type de la température en fonction de la puissance, ceci pour les quatre fréquences précédentes. Quelle que soit la fréquence de l'onde élastique, l'écart type augmente avec la puissance injectée. Cela signifie que plus une goutte est échauffée, plus l'intervalle de température dans lequel se trouve chaque pixel de la goutte s'agrandit. Nous pouvons en conclure que l'uniformité de la température diverge alors que la température moyenne de la goutte augmente. Pour améliorer l'uniformité, nous pouvons faire varier la fréquence de l'onde élastique qui, ici, joue un rôle important.

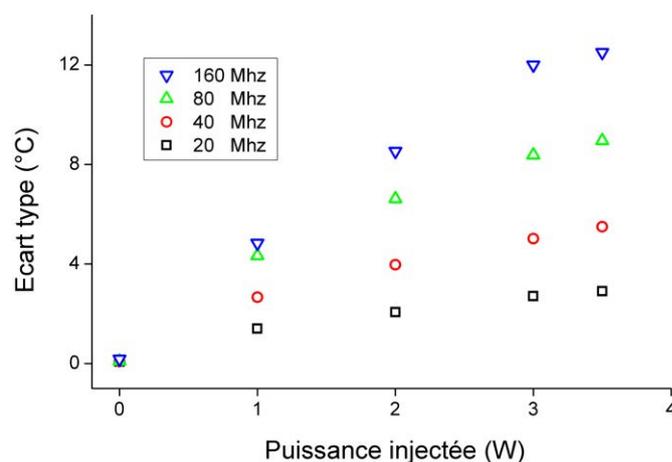


Figure IV.17 : Ecart type de la température de gouttes de glycérol de 10 μ L en fonction de la puissance injectée aux transducteurs pour différentes fréquences des ondes élastiques de surface.

Notons aussi que l'écart type décroît lorsque la fréquence diminue. Nous observons que l'écart type est divisé par 4 entre les fréquences de 160MHz et 20MHz. A la puissance maximale testée, l'écart type atteint 2,9°C à 20MHz et 12,5°C à 160MHz. D'après cette courbe et par interpolation linéaire, à une puissance de 1,5W, nous aurions un écart type de 1,8°C à

20MHz et 6,7°C à 160MHz. A ces puissances, le glycérol a une température moyenne de 66°C à 20MHz et 51°C à 160MHz (Figure IV.15). Nous pouvons donc déduire qu'à 20 MHz, 95% des pixels ont une température comprise entre 62,5°C et 69,5°C alors qu'à 160 MHz, l'intervalle est compris entre 37,8°C et 64,1°C. Nous remarquons donc la nécessité de travailler avec des ondes de faible fréquence et donc de grande longueur d'onde pour obtenir une meilleure uniformité de température. En observant les images infrarouges de la Figure IV.16, la température de la goutte est bien plus uniforme lorsque l'onde élastique est de faible fréquence grâce à la convection forcée.

D'après ces relevés, nous pouvons penser qu'en diminuant le volume de la microgoutte, et donc la distance de propagation de l'onde de compression dans le liquide, l'uniformité devrait être améliorée. Nous allons tenter de vérifier cela au prochain paragraphe.

IV.E.1.4.2. Effet du volume

L'écart type de la température est représenté en fonction de la puissance injectée à l'électrode avec différents volumes de microgoutte. La fréquence de l'onde élastique est fixée à 20MHz correspondant aux meilleurs résultats relevés précédemment et le volume varie de 100nl à 10µL. Comme auparavant, nous observons, sur la Figure IV.18, que plus la puissance injectée augmente, plus l'écart type de la température augmente. Nous pouvons affirmer, d'après cette figure, que le volume joue un rôle moins important que la puissance injectée à l'électrode et la fréquence des ondes. En effet, à puissance fixe, la variation de l'écart type de la température est faible. Pour toutes les puissances injectées au transducteur, la variation de l'écart type n'excède pas 0,7°C en fonction du volume de la microgoutte. Cependant, malgré les faibles variations, nous observons bien que les meilleures uniformités de température sont obtenues avec les volumes les plus petits. Il est, en effet, plus aisé d'échauffer uniformément un petit volume qu'un grand.

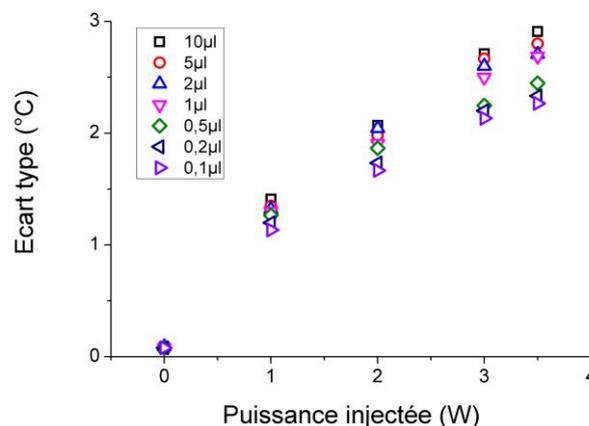


Figure IV.18 : Ecart type de la température de gouttes de glycérol en fonction de la puissance injectée aux transducteurs pour différents volumes de liquide. La fréquence de l'onde élastique est de 20MHz.

IV.E.1.5. Réduction des puissances en jeu

Comme nous l'avons vu, les transducteurs bidirectionnels émettent des ondes élastiques dans les deux sens et induisent une perte de 3dB. La Figure IV.19 montre ce comportement. En effet, deux gouttes sont positionnées de chaque côté du transducteur et nous pouvons observer que celles-ci sont échauffées de manière similaire nous indiquant que l'énergie acoustique se propageant de chaque côté du transducteur est équivalente. Un transducteur bidirectionnel est donc capable d'échauffer deux gouttes distinctes simultanément à la même température.

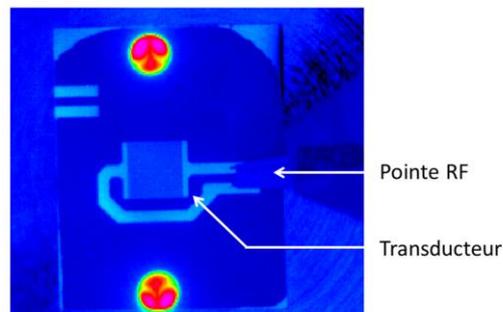


Figure IV.19 : Mise en évidence de la génération d'ondes élastiques de surface dans les deux sens en positionnant deux gouttes de glycérol de 10 μ L de chaque côté du transducteur bidirectionnel.

Dans le cas de l'échauffement d'une seule goutte et dans le but de réduire les puissances en jeu, nous pouvons récupérer l'énergie émise d'un des côtés du transducteur à l'aide d'un transducteur unidirectionnel. Théoriquement, l'énergie de l'onde se concentre, dans ce cas, vers un seul sens permettant de recueillir les 3dB « perdus » des transducteurs bidirectionnels. Vérifions ce comportement.

Nous avons échauffé une goutte de glycérol de 10 μ L placée à 10mm du transducteur unidirectionnel de fréquence de résonance 38,976MHz. La Figure IV.20 nous montre la température de la goutte de glycérol en fonction de la puissance, comparée aux températures relevées pour un transducteur bidirectionnel (Figure IV.14). Ici, l'échelle a été modifiée en dB_m pour vérifier le gain de ce type de transducteur. Nous remarquons qu'à puissance fixe, la température de la goutte est plus importante lorsqu'elle est échauffée pas le transducteur unidirectionnel. En traçant les tangentes aux deux courbes et en observant la différence en abscisse de ces deux tangentes, nous constatons un gain de 2,5 dB qui est proche de celui théorique de 3dB (écart de 17%). Cette différence s'explique par la réalisation non parfaite du transducteur. Nous avons pu visualiser au microscope, parfois, des courts circuits entre les électrodes ou des circuits ouverts qui altèrent la particularité de ces transducteurs. Nous pouvons d'ailleurs remarquer qu'une partie de l'énergie est émise de l'autre côté du transducteur unidirectionnel en plaçant une goutte de chaque côté de celui-ci (Figure IV.21). L'une d'entre elle est fortement échauffée car la majorité de l'énergie de l'onde élastique est focalisée de ce côté du transducteur. L'autre goutte s'échauffe plus faiblement nous indiquant qu'une partie de l'énergie de l'onde est générée de ce côté du transducteur.

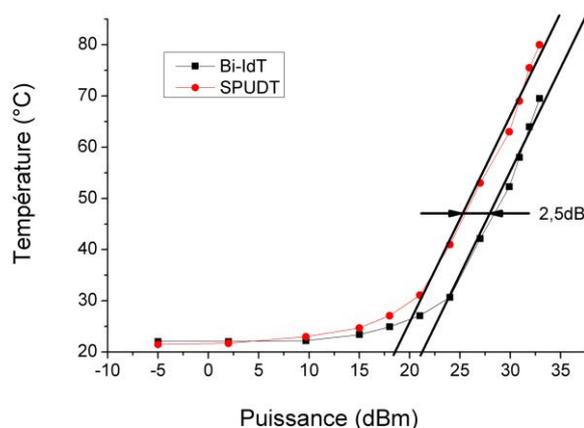


Figure IV.20 : Température d'une goutte de 10 μ L de glycérol en fonction de la puissance injectée aux deux transducteurs, bidirectionnel (Bi-IdT) et unidirectionnel (SPUDT). Le gain de puissance est de 2,5dB avec un transducteur unidirectionnel.

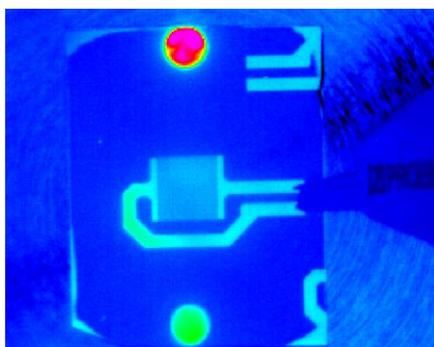


Figure IV.21 : Echauffement de gouttes de glycérol de 10 μ L par des ondes élastiques de Rayleigh générées par un transducteur unidirectionnel. Une partie de l'énergie s'échappe vers le bas nous indiquant que le transducteur n'est pas parfait.

Nous avons vu que nous pouvons optimiser et réduire la puissance électrique nécessaire pour échauffer des microgouttes en modifiant le design des transducteurs. Qu'en est-il de l'uniformité de la température avec ce type de transducteur ? Nous ne devrions pas nous attendre à une amélioration ou à une détérioration de l'uniformité. En effet, le seul changement entre ces deux types de transducteur réside dans la récupération de l'énergie émise d'un côté du transducteur bidirectionnel. Nous avons vérifié cela en observant l'écart type de la température d'une goutte de glycérol échauffée par un transducteur unidirectionnel et bidirectionnel. Les résultats sont présentés à la Figure IV.22 avec l'écart type de la température en fonction de la puissance injectée aux électrodes en a). Nous remarquons que les courbes ont la même tendance d'évolution avec, ici aussi, un décalage de 2,4dB correspondant au gain du transducteur unidirectionnel. Il est plus judicieux, ici, de représenter l'évolution de l'écart type en fonction de la température de la goutte. En effet, à puissance injectée fixe aux deux types de transducteur, la température moyenne est bien plus élevée dans le cas de l'échauffement par un transducteur unidirectionnel. Nous traçons ainsi l'écart type de la température en fonction de la température moyenne de la goutte présenté à la

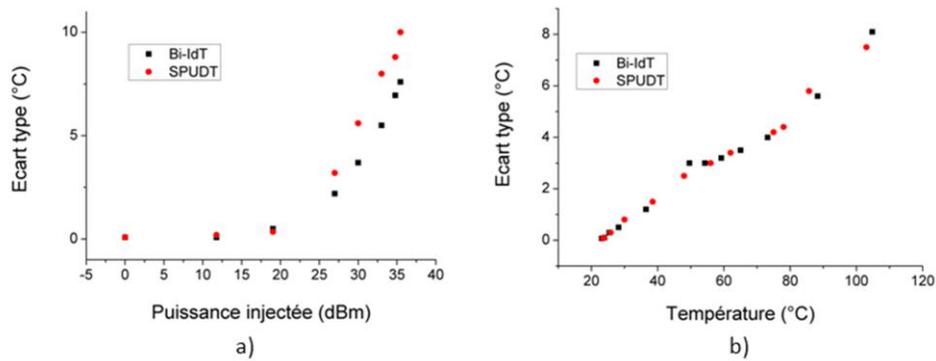


Figure IV.22 : Ecart type de la température d'une goutte de glycérol de 10µL en fonction de la puissance injectée en a) et en fonction de la température en b) d'un échauffement par onde élastique de Rayleigh générée par des transducteurs bidirectionnel (Bi-IdT) et unidirectionnel (SPUDT)

Figure IV.22 b). Nous observons ici un comportement plutôt linéaire de l'écart type en fonction de la température moyenne de la goutte. A température fixe, l'écart type est équivalent pour les deux types de transducteur. L'uniformité de la température n'est donc pas améliorée ou détériorée en utilisant un transducteur unidirectionnel.

Nous avons cherché une solution pour encore diminuer les puissances mises en jeu et améliorer l'uniformité de la température. Pour cela, nous avons pensé un nouveau dispositif où la goutte est directement posée sur le transducteur permettant d'éviter certaines pertes et de profiter d'autres avantages.

IV.E.2. Dispositif à transducteur enterré

Dans le but d'améliorer l'uniformité de la température de la goutte et de diminuer les puissances mises en jeu, nous développerons des dispositifs à transducteur enterré afin de poser les microgouttes directement dessus. En effet, Nous avons vu précédemment que les transducteurs bidirectionnels induisent une perte de 3dB, inhérent à leur structure. En modifiant le design des électrodes de manière à obtenir des transducteurs unidirectionnels, il est possible en théorie de récupérer ces 3dB. En pratique, nous avons vu que le gain était de 2,5dB et qu'une partie de l'énergie était tout de même perdue. Nous avons ainsi pensé un nouveau dispositif où la goutte serait directement posée sur le transducteur. Ainsi, toute énergie électrique transformée en énergie mécanique devrait être directement captée par le liquide (Figure IV.23).

IV.E.2.1. Réalisation des dispositifs

Pour ce type de dispositif, le transducteur, métallique, doit être isolé du liquide pour éviter tout dommage tel que le court-circuit (Figure IV.23). Pour cela, nous déposerons une couche de dioxyde de silicium (SiO_2) par pulvérisation cathodique sur le transducteur bidirectionnel développé précédemment. Le dioxyde de silicium a l'avantage d'être un matériau électriquement isolant, transparent, et surtout, biocompatible ce qui est

indispensable pour les futures applications. Les conditions de dépôt de la couche de SiO₂ sont précisées dans le Tableau IV.3. La couche obtenue a une épaisseur de 300nm recouvrant tous les doigts du transducteur. Un revêtement de P(VDF-TrFe) hydrophobe est déposée pour maintenir la goutte avec un angle de contact statique. Nous avons choisi le dispositif SAW de fréquence de résonance proche de 40MHz. Nous aurions pu choisir celui à 20MHz avec lequel nous avons eu les meilleurs résultats mais l'électrode a des dimensions trop grandes et une goutte de 10µl avec un angle de contact statique de 80° ne couvre que 11% de la surface de l'électrode et 9% avec un angle de 90°. Voyons maintenant si la couche influe sur la génération des ondes élastiques de Rayleigh.

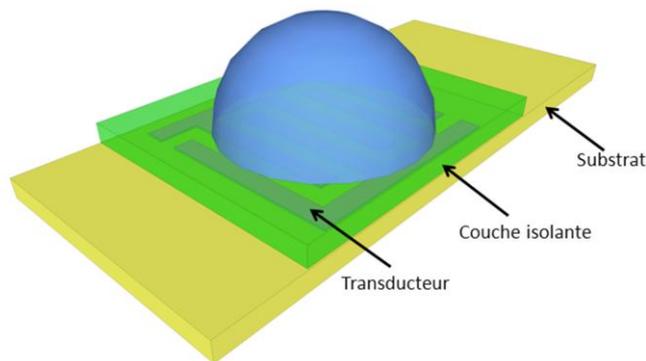


Figure IV.23 : Image du dispositif à onde élastique de surface enterré

Débit Gaz	Pression	Puissance RF	Température	Temps
N2 : 20 sccm	6.10 ⁻³ mbar	100W	Ambiante	2000s

Tableau IV.3 : Conditions expérimentales pour le dépôt de la couche de dioxyde de silicium (SiO₂) par pulvérisation cathodique

IV.E.2.2. Réponse fréquentielle

Pour déterminer l'influence de la couche sur les propriétés de l'onde élastique, nous avons relevé la réponse fréquentielle du dispositif avant et après le dépôt de la couche de SiO₂. Nous observons le paramètre S_{11} des dispositifs à l'aide de l'analyseur de réseau Agilent Technologies N5230A. Le paramètre S_{11} est le coefficient de réflexion du dispositif, c'est-à-dire le rapport entre le signal réfléchi et le signal incident. Les deux courbes sont présentées à la Figure IV.24 avec en noir la réponse fréquentielle du dispositif sans couche et en rouge pointillé, celle après le dépôt. Nous observons que l'ajout de la couche isolante de dioxyde de silicium d'épaisseur 300nm ne modifie pas la réponse fréquentielle du dispositif. La génération de l'onde élastique de Rayleigh n'est donc pas perturbée par cette couche. Cependant, elle peut toutefois affecter la vitesse de propagation ou l'atténuation de l'onde élastique. Nous n'avons pas vérifié ces possibilités car dans notre application, les ondes seront directement atténuées par la goutte posée sur le transducteur. Elles ne se propageront pas à la surface du matériau piézoélectrique.

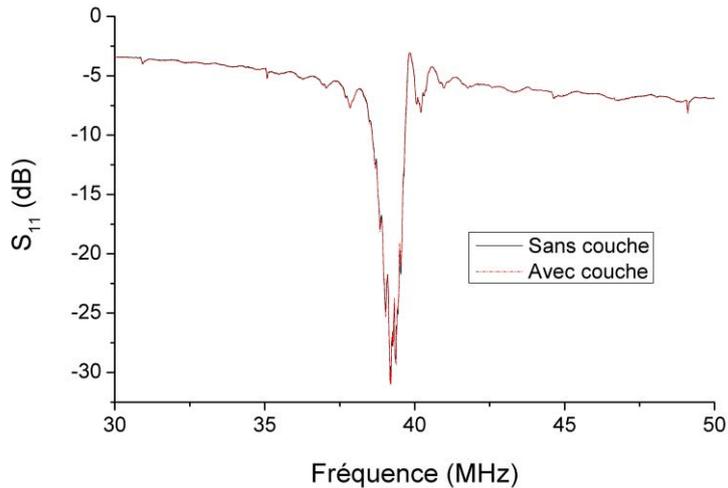


Figure IV.24 : Réponses fréquentielles du dispositif à onde élastique de surface avant et après le dépôt de la couche de dioxyde de silicium

IV.E.2.3. Image infrarouge

La répartition de la chaleur d'une goutte, échauffée par les dispositifs enterrés, n'est pas la même que précédemment. En effet, les transducteurs enterrés bidirectionnels émettent de l'énergie dans les deux directions. Par conséquent, les ondes élastiques atténuées dans le liquide créent deux forces identiques de direction opposée. En plaçant une goutte au centre de l'électrode, ce n'est plus deux mais quatre vortex que nous observons. Une image infrarouge est présentée à la Figure IV.25. Une goutte de 10 μ l de glycérol est posée sur le dispositif avec une puissance injectée de 1,5W. Nous observons bien les quatre vortex générés par les deux forces identiques de direction opposée.

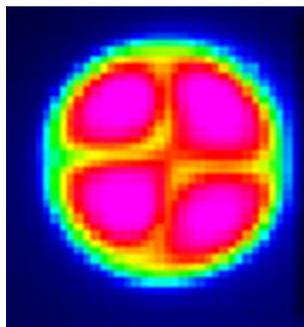


Figure IV.25 : Image infrarouge vue de dessus d'une goutte placée sur le dispositif à transducteur enterré. Quatre vortex sont générés dus à la bidirectionnalité du transducteur.

IV.E.2.4. Echauffement des gouttes

Afin d'observer l'échauffement des gouttes, nous effectuons les mêmes expériences que précédemment. Nous plaçons des gouttes de 10 μ l de différentes viscosités sur le dispositif et nous faisons varier la puissance injectée au transducteur. La température est tracée en

fonction de ces deux paramètres et présentée à la Figure IV.26. Comme avec les dispositifs classiques, nous remarquons que la température augmente avec la puissance injectée. De même, à puissance fixe, la température croît avec la viscosité. Deux points ressortent de cette figure :

- Il est possible d'injecter des puissances électriques plus importantes qu'auparavant avec la goutte d'eau de viscosité 1,005mPa.s. Avec les dispositifs « classiques » de la partie (IV.E.1), le seuil limite était de 0,5W alors qu'ici, il est de 1,7W. En effet, les deux forces égales et opposées, engendrées par l'atténuation des ondes élastiques, s'annulent évitant ainsi la déformation asymétrique de la goutte. Au-delà de 1,7W, l'écoulement interne, induisant de fortes vibrations, et l'évaporation du liquide rendent les mesures péniblement exploitables.
- Les températures atteintes sont supérieures à 95°C, température correspondante à celle maximum de la PCR (température de dénaturation des doubles brins d'ADN). Ce seuil est dépassé avec des liquides de faible viscosité. Comme nous le montre la Figure IV.26, la température des gouttes dont la viscosité est supérieure à 10,8mPa.s (correspondant à 60% massique de glycérol dans un mélange eau/glycérol) dépasse 95°C. Pour le glycérol, de viscosité 1410mPa.s, ce seuil est atteint pour une puissance injectée de 1,67W. Pour le liquide de viscosité 10,8mPa.s, elle est de 2,6W.

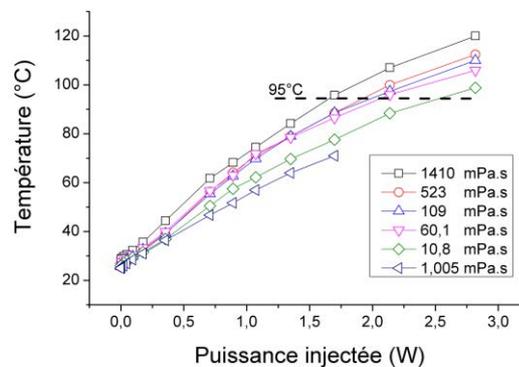


Figure IV.26 : Température de gouttes de 10µl en fonction de la puissance injectée au transducteur pour différentes viscosités.

Etudions maintenant le gain de ce dispositif. Pour cela, nous traçons la température d'une goutte de glycérol de 10µl en fonction de la puissance et nous reportons les résultats des dispositifs classiques bidirectionnel et unidirectionnel de la partie (IV.E.1) concernant les dispositifs classiques. Les courbes sont présentées à la Figure IV.27. Nous observons qu'en dessous d'une puissance injectée de 0,5W, le dispositif enterré ne semble pas plus performant que le dispositif classique unidirectionnel (SPUDT). Cependant, au-delà de ce seuil, il est bien plus efficace que les deux autres. Comme nous l'avons vu précédemment, les transducteurs unidirectionnels ne sont pas parfaits et induisent de faibles pertes. En plaçant la goutte sur le

transducteur de manière à recouvrir entièrement sa surface, ces pertes sont évitées car toute l'énergie de l'onde élastique est transférée à la goutte. La variation de température ne s'explique pas uniquement par cette différence. En effet, lorsqu'un courant traverse un transducteur métallique, il se produit un échauffement dû à l'effet Joule. Cet échauffement est bien visible sur la Figure IV.28 a) et contribue ainsi à l'échauffement de la goutte. Nous avons quantifié cet échauffement avec un dispositif spécifique dont le schéma est présenté à la Figure IV.28 b). Un transducteur bidirectionnel est excité par un signal électrique de différentes puissances. Les ondes se propagent librement jusqu'à la limite du substrat où un absorbant acoustique est placé pour éviter les réflexions. A gauche du transducteur est déposée une couche de peinture hautement émissive ($\epsilon = 0,98$). Cette couche n'est pas influencée par les ondes élastiques et ne subit que l'échauffement dû à l'effet Joule de l'électrode. L'échantillon est placé sur un porte substrat en aluminium de 10mm d'épaisseur. Nous relevons la température moyenne sur une zone de 800pixels la plus proche du transducteur en fonction de la puissance injectée à celui-ci (Figure IV.28 c). A faible puissance, la température du substrat est constante. Au-delà de 120mW, la température augmente et est linéaire en fonction de la puissance injectée. Avec une puissance de 2W, la température du substrat s'accroît de plus de 10°C.

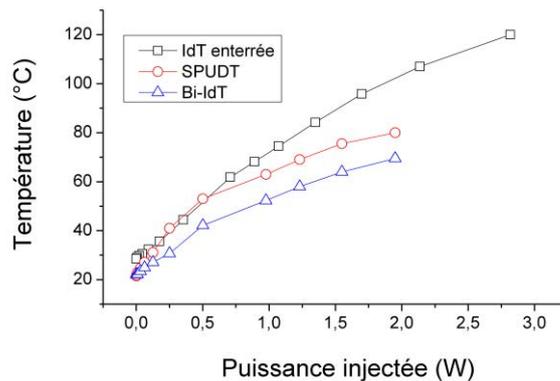


Figure IV.27 : Température de gouttes de 10µl de glycérrol en fonction de la puissance injectée pour les trois types de dispositif : Transducteur enterré en noir, transducteur unidirectionnel en rouge et transducteur bidirectionnel en bleu

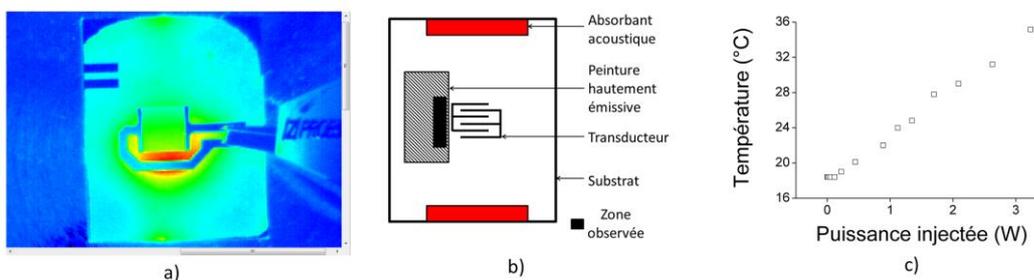


Figure IV.28 : Image infrarouge de l'échauffement de l'électrode dû à l'effet Joule en a), dispositif pour quantifier l'échauffement dû à l'effet Joule en b) et température du substrat proche du transducteur en fonction de la puissance injectée c).

Cet échauffement par effet Joule n'est donc pas négligeable avec ce type de dispositif et contribue à l'échauffement de la goutte lorsque celle-ci est posée sur le transducteur. Il ne s'agit pas de la source principale de chaleur qui est, ici, l'atténuation des ondes élastiques dans le liquide. En effet, quelle que soit la puissance injectée, l'échauffement du substrat (Figure IV.28 c) est moindre par rapport à l'échauffement des gouttes posées sur le transducteur (Figure IV.26). Comme exemple, une puissance électrique de 2W échauffe le substrat de 7°C alors que la goutte de glycérol s'échauffe de plus de 75°C.

IV.E.2.5. Uniformité de l'échauffement

Intéressons-nous maintenant à l'uniformité de l'échauffement de la goutte. Nous avons relevé l'écart type de la température de la goutte en fonction de la puissance injectée pour plusieurs viscosités (Figure IV.29 a). Nous observons qu'à faible puissance, les écarts types sont presque équivalents sauf pour l'eau de viscosité 1,005mPa.s. Au-delà de la puissance de 0,5W, les écarts types commencent à diverger. A forte puissance, on relève que l'écart type est d'autant plus important que la viscosité est grande. Comme nous l'avions présenté au IV.E.1.4, les plus grands écarts types le sont avec les liquides les plus visqueux. En effet, l'atténuation de l'onde élastique est fonction de la viscosité (cf. équation (IV.24)). Plus la viscosité augmente, plus l'onde est atténuée rapidement ce qui induit un échauffement de plus en plus localisé à l'interface substrat liquide. Par ailleurs, la vitesse de l'écoulement diminue avec la viscosité [1] ce qui induit une convection forcée moins intense. Ces deux phénomènes entraînent donc une uniformité de température de moins en moins bonne à mesure que la viscosité augmente. C'est pour cette raison que nous avons opté pour une étude d'uniformité avec le glycérol dans la partie IV.E.1.4 car il s'agit du cas le plus défavorable. En travaillant avec des liquides moins visqueux, l'uniformité est meilleure comme nous le présente la Figure IV.29 a). Observons maintenant le gain entre ce dispositif et les dispositifs « classiques ». La Figure IV.29 b) présente la comparaison des écarts type d'une goutte de 10 μ l de glycérol avec le dispositif enterré et ceux « classiques » (données issue de la Figure IV.22 du paragraphe IV.E.1.5). Nous remarquons que l'uniformité est améliorée quelle que soit la température de la goutte. A partir de 75°C, l'écart type est divisé par un facteur supérieur à deux. A 87°C, l'écart type est de 2,84°C avec une électrode enterrée alors qu'avec les deux autres types de transducteur, il est de 5,8°C. Ceci signifie que dans le premier cas, 95% des pixels ont une température comprise entre 81,43°C et 92,57°C alors que dans le second, l'intervalle est 75,63°C à 98,37°C. Nous comprenons ici l'intérêt d'échauffer des gouttes par un transducteur enterré pour minimiser l'écart type de la température et améliorer l'uniformité.

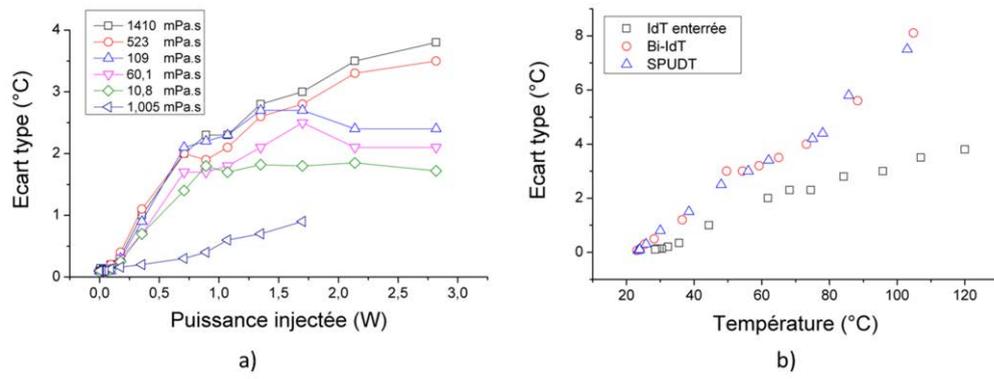


Figure IV.29 : Ecart type de la température en fonction de la puissance injectée et de la viscosité pour le dispositif enterré en a) et écart type en fonction de la température pour les trois types de dispositif avec une goutte de 10 μ l de glycérol en b).

IV.F. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié principalement l'échauffement et l'uniformité de l'échauffement de gouttes avec différents dispositifs et conditions expérimentales à l'aide d'une caméra infrarouge. Après un rappel sur des notions de thermographie infrarouge, nous avons confirmé expérimentalement les viscosités des liquides et déterminé les émissivités des matériaux utilisés. Avant d'exposer les résultats, le protocole expérimental a été présenté pour la mesure de température des gouttes et des écarts types des températures, représentatifs de l'uniformité de la chaleur au sein des gouttes.

Premièrement, nous avons étudié l'échauffement et l'uniformité de la température de gouttes avec un dispositif classique à transducteur bidirectionnel où les gouttes sont déposées à 10mm du transducteur. Nous avons confirmé que l'échauffement est d'autant plus grand que la viscosité augmente [1] [3]. L'étude de l'échauffement en fonction de la fréquence de l'onde élastique nous a montré qu'il était important de travailler à des fréquences aussi faibles que possible pour maximiser la température et l'uniformité de l'échauffement dans la goutte. Ensuite, nous avons étudié l'effet du volume de la goutte et avons conclu que l'uniformité est optimisée avec des gouttes de faible volume.

Deuxièmement, un second dispositif, à transducteur unidirectionnel, a été développé afin de réduire la puissance électrique injectée au dispositif pour des températures de goutte équivalentes. En effet, les transducteurs bidirectionnels émettent la même énergie dans les deux sens ce qui permet d'échauffer deux gouttes en même temps et à la même température. Dans le cas de l'échauffement d'une seule goutte, la moitié de l'énergie totale est donc perdue ce qui induit une perte inhérente de 3dB. Cette perte peut être réduite fortement en modifiant la structure des transducteurs pour les rendre unidirectionnels. Théoriquement, toute l'énergie de l'onde est ainsi concentrée dans une seule direction. En pratique, nous avons montré qu'une partie de l'énergie est perdue qui peut être due aux imperfections des transducteurs. En comparant à un transducteur bidirectionnel, le transducteur unidirectionnel permet malgré tout un gain en puissance de 2,5dB.

Enfin, dans un troisième temps, nous avons pensé un nouveau dispositif pour améliorer l'uniformité et réduire au maximum la puissance injectée. Le dispositif est un transducteur bidirectionnel enterré sous une couche d'oxyde de silicium qui ne perturbe pas la génération des ondes élastiques de Rayleigh. Ce design permet de poser les gouttes directement sur le transducteur enterré. Nous avons ainsi observé une amélioration de l'échauffement et de l'uniformité de la température au sein des gouttes. Des températures supérieures à la température maximale de la réaction de PCR ont été observées pour des liquides de viscosités supérieures à 10,8mPa.s avec des puissances injectées inférieures à 2,5W.

Au-delà de l'aspect d'échauffement de goutte, la thermographie infrarouge est un outil qui permet d'imager l'efficacité d'un transducteur comme nous l'avons montré avec les électrodes bidirectionnelles et unidirectionnelles. Avec les substrats à faible perte de

propagation, tel que le niobate de lithium de coupe $Y+128^\circ$ que nous avons utilisé, et deux gouttes placées de chaque côté du transducteur, nous pouvons observer leurs échauffements et déterminer qualitativement l'efficacité du transducteur.

Dans le cas des substrats à plus forte perte de propagation tel que le Langasite [9], la visualisation infrarouge de l'échauffement dû à la propagation des ondes élastiques est possible. En effet, comme l'énergie de l'onde est confinée en surface (95% de l'énergie est confinée dans une épaisseur équivalente à trois fois la longueur d'onde), les pertes de propagation permettent de libérer une partie de l'énergie de l'onde qui chauffe la surface du substrat. Plus les pertes en propagations sont élevées, plus l'énergie cédée l'est aussi et plus l'échauffement est important. La Figure IV.30 a) nous présente un dispositif à base de Langasite avec un transducteur (IdT) de fréquence de 342,77MHz. L'onde est suffisamment confinée et nous observons très bien son parcours sur la Figure IV.30 b).

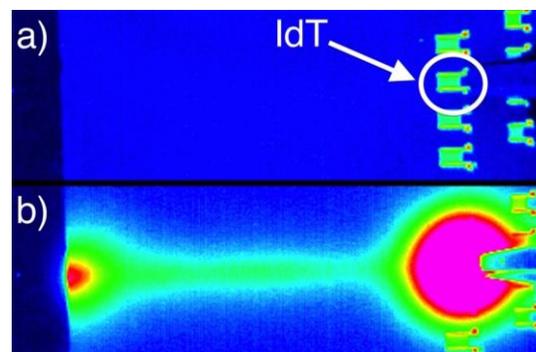


Figure IV.30 : Visualisation de la propagation des ondes élastiques de Rayleigh sur un substrat de Langasite.

Comparée à d'autres techniques telles que la thermographie à cristaux liquides [10] ou l'utilisation de thermocouples, la thermographie infrarouge offre les avantages d'être une technique non destructive, ce qui permet de réutiliser les échantillons pour le même type d'expérience ou pour d'autres, et sans contact, évitant de polluer ou contaminer les échantillons et d'affecter les mesures. La thermographie infrarouge est ainsi une méthode très intéressante pour observer l'effet d'échauffement causé par les pertes en propagation des ondes élastiques de surface. Grâce à cette technique, il est possible de constater l'efficacité de transducteurs, tels que présentés précédemment ou de résonateurs. En effet, ces derniers nécessitent une architecture particulière permettant de confiner les ondes. La thermographie infrarouge permet de vérifier ce confinement en observant si l'onde se propage en dehors du résonateur. Pour résumer, cette technique requiert d'être étudiée d'avantage. Elle possède un potentiel intéressant pour étudier et comprendre le fonctionnement de dispositifs à ondes élastiques de surface dans le but d'améliorer leur efficacité.

Bibliographie

- [1] D. Beyssen, Conception, étude et réalisation de micro-capteur et micro-actionneurs chimiques et biologiques à base de dispositifs à ondes acoustiques de surface, Thèse de doctorat de l'Université Henri Poincaré Nancy-I, 2006.
- [2] J. Kondoh, N. Shimizu, Y. Matsuic, M. Sugimoto et S. Shiokawa, «Development of temperature-control system for liquid droplet using surface Acoustic wave devices», *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 149, p. 292–297, 2009.
- [3] J. Kondoh, N. Shimizu, Y. Matsui, M. Sugimoto et S. Shiokawa, «Development of SAW thermocycler for small liquid droplets», *IEEE Ultrasonics Symposium*, pp. 1023-1027, 2005.
- [4] N. Ernest Dorsey, *Properties of ordinary water-substance in all its phases: water vapor, water, and all the ices*, New York: Reinhold publishing corporation, American Chemical Society, 1940.
- [5] P. Defranould et P. Wright, «Filtre à ondes de surface», *Techniques de l'ingénieur*, vol. E2200, 2000 .
- [6] K. Hanma et B. Hunsinger, «A Triple Transit Suppression Technique», *IEEE International Ultrasonics Symposium*, pp. 328-331, 1976.
- [7] A. Renaudin, J. Sozanski, B. Verbeke, V. Zhang, P. Tabourier et C. Druon, «Monitoring SAW-actuated microdroplets in view of biological applications», *Sensors and Actuators B*, vol. 138, pp. 374-382, 2009.
- [8] A. Renaudin, P. Tabourier, J. Camart et C. Druon, «Surface acoustic wave two-dimensional transport and location of microdroplets using echo signal», *Journal of applied physics*, vol. 100, p. 116101, 2006.
- [9] B. Vincent, T. Aubert, O. Elmazria, M. Seifaddini, D. Rouxel et J. Krüger, «Brillouin spectroscopy applied to the characterization of SAW propagation losses in langasite», *IEEE International Ultrasonics Symposium Proceedings*, pp. 539-542, 2010.
- [10] C. Huck, H. Zidek, T. Ebner, K. Wagner et A. Wixforth, «Liquid crystal thermography on coated SAW device», *IEEE International Ultrasonics Symposium*, pp. 2493-2496, 2012.

Chapitre 5

Compatibilité des dispositifs à ondes élastiques de surface avec la réaction de PCR

Chapitre V : Compatibilité des dispositifs à ondes élastiques de surface avec la réaction de PCR

V.A. Introduction

La réaction de PCR (Polymerase Chain Reaction) est une réaction enzymatique réalisée par cycle thermique et capable de dupliquer des séquences d'ADN bien précises. Cette réaction, fondamentale dans les domaines tels que la biologie et la médecine, permet de rendre décelables, et par conséquent analysables, des séquences ADN souvent indétectables dans les échantillons initiaux. La miniaturisation de cette réaction est très étudiée, dans le but de diminuer les durées réactionnelles et de réaliser des dispositifs d'analyses toujours plus petits. L'objectif est de proposer des systèmes portables et capables de diagnostiquer des maladies de plus en plus rapidement. Dans le but d'intégrer cette réaction à un système type μ TAS à base d'ondes élastiques de surface, nous allons vérifier la compatibilité entre les réactifs de la réaction de PCR et les ondes élastiques de surface indispensables à l'échauffement.

Il pourrait être tentant d'affirmer de suite que la réaction de PCR est compatible avec le système d'échauffement de goutte présenté précédemment. En effet, nous avons vu dans le quatrième chapitre que le dispositif à transducteur enterré est capable d'échauffer des gouttes à des températures supérieures à celles de la PCR. Cependant, la contrainte pour atteindre ces températures impose une viscosité des gouttes supérieure à 10,8mPa.s. On peut alors se poser la question de l'effet de la viscosité sur la réaction de PCR.

Par ailleurs, l'interaction entre une onde élastique de surface de Rayleigh et une microgoutte induit une onde longitudinale dans le liquide. Cette dernière se propage, au niveau atomique, par dilatations et compressions successives des atomes dans le liquide ce qui, à l'échelle des réactifs de la PCR, agit directement dessus. Il est donc pensable qu'une onde longitudinale assez énergétique puisse dégrader ou détruire un ou plusieurs des réactifs et ainsi limiter voire compromettre la réaction de PCR.

Nous allons, dans ce chapitre, éclaircir ces deux points. Pour cela, nous avons été amenés à collaborer avec une équipe de biologistes qui nous a fourni de nombreux échantillons contenant les réactifs de la réaction de PCR. Cette équipe est celle du professeur Becuwe, que nous remercions chaleureusement, du laboratoire CRAN (Centre de Recherche en Automatique de Nancy) qui travaille principalement sur la recherche translationnelle en cancérologie. Une fois les échantillons traités, ces derniers sont retournés à l'équipe de biologiste pour analyse.

Nous commencerons par présenter la réaction de PCR et son principe avant d'exposer quelques applications parmi les nombreuses qui existent. Nous verrons ensuite que la miniaturisation du système de PCR est un enjeu important dans le but d'intégrer cette

réaction sur des laboratoires sur puce. Pour cela, nous introduirons le concept de PCR microfluidique qui a permis, depuis l'avènement de la microfluidique, plusieurs améliorations notables de la réaction. Nous présenterons par la même occasion qu'un dispositif de PCR microfluidique à base d'onde élastique de surface a déjà été développé. Cependant, le système d'échauffement n'est pas à base d'onde élastique. Nous verrons alors en quoi nous pouvons améliorer ce dispositif. Finalement, nous présenterons les résultats de cette étude concernant l'effet de la viscosité du milieu et l'effet réactionnel des ondes élastiques de surface vis-à-vis de la réaction de PCR.

V.B. La réaction de PCR

V.B.1. Définition et historique

La PCR (Polymerase Chain Reaction, - réaction en chaîne par polymérase) est une réaction biologique moléculaire *in vitro* d'amplification génétique. C'est une technique qui permet d'obtenir, à partir d'un échantillon complexe et peu abondant, d'importantes quantités d'un fragment d'ADN (Acide DésoxyriboNucléique) spécifique et de longueur définie. L'ordre de grandeur à retenir est celui du million de copies en une centaine de minutes. Ainsi, à partir d'échantillons où l'analyse de brins d'ADN est difficile (voire impossible) en raison d'une faible quantité, cette réaction amplifie ces brins et facilite leurs analyses et détections. Cette réaction est basée sur des cycles thermiques, typiquement une trentaine, composés de trois étapes : La dénaturation de l'ADN à environ 95°C, l'hybridation à 50°C et l'élongation à 72°C. Nous expliquerons ces trois étapes dans la partie (V.B.2.1).

Cette technique d'amplification a été mise au point en 1986 par K. Mullis [1] qui a obtenu le prix Nobel de Chimie pour ses travaux en 1993. Il faut savoir qu'avant cette découverte, la méthode d'amplification était assez longue. Auparavant, une telle opération nécessitait impérativement le clonage de la séquence ADN, son isolement, son amplification dans une cellule hôte et sa purification. Cette méthode, plutôt lourde, a été abandonnée, dès que possible, au profit de la PCR qui a certainement connu le développement le plus spectaculaire et le plus rapide dans l'histoire de la biologie.

En effet, 2 ans plus tard est réalisée par R.K. Saiki [2] la première réaction de PCR avec une enzyme thermostable : la Taq (extraite de la bactérie thermophile *Thermus aquaticus*) qui permet une « automatisation » de la technique. Jusqu'alors, les enzymes classiques étaient détruites à l'étape de dénaturation. L'ouverture des tubes et l'ajout d'enzymes à chaque cycle de PCR étaient nécessaires ce qui induisait de fortes possibilités de contamination. Depuis les travaux de R.K. Saiki et l'utilisation de la Taq Polymérase comme enzyme pour l'étape d'élongation, la réaction de PCR a connu un essor considérable et est aujourd'hui une technique incontournable dans les laboratoires biologiques et médicaux.

Les nombreux travaux, concernant cette réaction, ont mené 4 ans plus tard, en 1992, à la réalisation de la première réaction de PCR en temps réel, aussi nommée PCR quantitative, par R. Higuchi [3]. Les séquences d'ADN spécifiques sont détectées en même temps que la réaction, en temps réel. Dans cette étude [3], cette amélioration nécessite l'ajout de bromure d'éthidium (BET) qui fluoresce en présence de doubles brins d'ADN. Une augmentation de la fluorescence dans le tube réactionnel indique alors une amplification positive. Celle-ci peut alors être surveillée facilement, au fil de l'eau, afin de suivre sa progression. Cette capacité à amplifier simultanément des séquences d'ADN spécifiques et à détecter le produit de l'amplification a permis de simplifier et d'accélérer tout le protocole expérimental.

Depuis tous ces travaux, des industriels ont commercialisé des systèmes automatisés capables de réaliser autant de cycles de PCR que l'utilisateur le souhaite. Ces systèmes, appelés thermocycleurs, sont nombreux et courants dans les laboratoires biologiques. Plusieurs dizaines voire centaines de réaction peuvent être réalisées en parallèle pour des dimensions de l'appareil de l'ordre du décimètre et des prix raisonnables ce qui en fait un appareil incontournable.

V.B.2. Principe de la réaction

Dans cette partie, nous allons présenter le principe de la PCR. Comme nous l'avons vu, l'objectif de cette réaction est d'amplifier des doubles brins d'ADN. La première étape sera de séparer la double hélice en deux monobrins d'ADN. La suite de la réaction consiste à compléter, ou plutôt synthétiser ces deux monobrins grâce à la complémentarité des bases pour former deux nouvelles doubles hélices. Nous commencerons par présenter la composition de l'ADN avant d'exposer rapidement les différents acteurs de la réaction. Nous expliquerons ensuite les trois étapes thermiques de la PCR.

V.B.2.1. Le milieu réactionnel

V.B.2.1.1. ADN cible

Tout d'abord, définissons l'ADN (Acide DesoxyriboNucléique). Il s'agit d'une molécule très longue composée d'une succession de nucléotides et présente dans toute cellule vivante. Elle code l'ensemble des informations nécessaires au développement et au fonctionnement d'un organisme. La structure de l'ADN, présentée à la Figure V.1, est formée de deux brins complémentaires enroulés en hélice que nous nommerons souvent double hélice.

Les brins sont constitués de désoxyribonucléotides. Ces derniers font partie de la famille des nucléotides. Nous les appellerons ainsi dans la suite. Ces nucléotides sont en fait l'unité élémentaire de l'ADN. Chacun d'entre eux est constitué de trois parties : un groupe phosphate lié à un résidu désoxyribose lui-même lié à une base azotée (Figure V.2). Il existe quatre bases azotées (l'adénine notée A, la thymine notée T, la guanine notée G et la cytosine notée C) ce qui induit quatre nucléotides pour l'ADN :

- le dAMP dont la base azotée est l'adénine
- le dGMP dont la base azotée est la guanine
- le TMP dont la base azotée est la thymine
- le dCMP dont la base azotée est la cytosine

Pour plus de transparence, nous indiquerons ces nucléotides par l'abréviation dNTP, qui est l'appellation courante du mélange des quatre nucléotides. L'ordre des nucléotides est très précis et correspond à l'information génétique. Les bases constituant les nucléotides sont complémentaires et s'associent par paires avec des liaisons hydrogènes de faible énergie :

- L'adénine avec la thymine (A-T) et inversement (T-A)
- La guanine avec la cytosine (G-C) et inversement (C-G)

Il y a deux liaisons hydrogènes entre A et T et trois liaisons entre G et C (Figure V.1) [4].

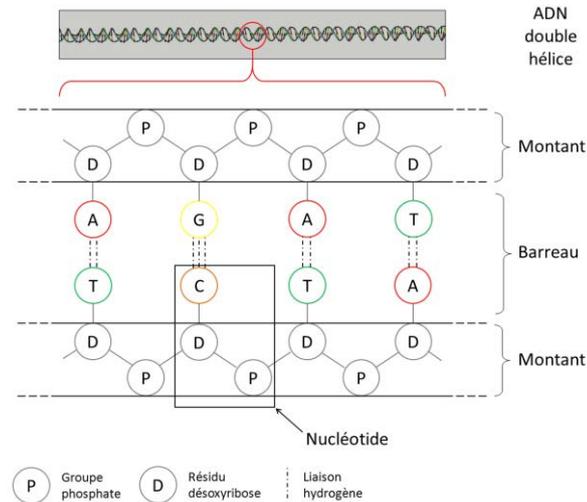


Figure V.1 : Structure de l'ADN

Les nucléotides sont reliés ensemble grâce à des liaisons impliquant un groupe phosphate (Figure V.2) que nous appellerons des liaisons 5'-3' phosphodiester. Pour fabriquer un brin d'ADN, il suffit donc de combiner des nucléotides en les reliant par ce type de liaisons. Pour d'avantage de transparence dans les futures figures, nous ne représenterons plus les groupes phosphates, les groupes désoxyriboses et les liaisons hydrogènes.

L'ADN que l'utilisateur souhaite amplifier est appelé ADN cible (Figure V.2). Ce dernier représente un fragment d'un double brin d'ADN et est constitué d'une centaine de paires de bases à plusieurs milliers. La Figure V.2 représente un double brin d'ADN et une séquence cible.

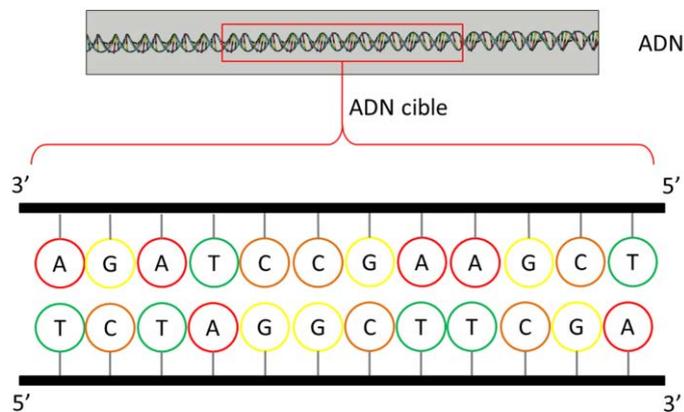


Figure V.2 : ADN cible

Les brins d'ADN sont orientés dans le sens 5' vers 3' comme le montre la Figure V.2 en raison de notations liées à la géométrie du désoxyribose. Deux brins d'une double hélice sont complémentaires et antiparallèles. D'une manière plus simple, ils sont assemblés tête bêche : l'extrémité 5' de l'un est liée avec l'extrémité 3' de l'autre et inversement comme le montre la Figure V.2.

V.B.2.1.2. Les réactifs

D'autres réactifs sont nécessaires à la réalisation de la PCR. Les amorces, l'enzyme Taq et les désoxyribonucléotides sont les principaux acteurs de la réaction. Nous allons expliquer leurs rôles dans la prochaine partie, en parallèle de la présentation des différentes étapes de la réaction.

V.B.2.1. Etapes de la réaction

La réaction de PCR s'effectue par cycle de températures. Trois étapes par cycle sont nécessaires pour doubler la quantité initiale d'ADN : la dénaturation, l'hybridation et l'élongation. Une figure représentera chaque étape de la réaction.

V.B.2.1.1. La dénaturation

La première étape consiste à séparer la double hélice d'ADN en deux monobrins en rompant les liaisons hydrogènes entre les bases complémentaires de l'ADN. Pour cela, le mélange réactionnel est simplement échauffé à une température de 92°C ce qui sépare les deux brins de l'ADN source (Figure V.3)

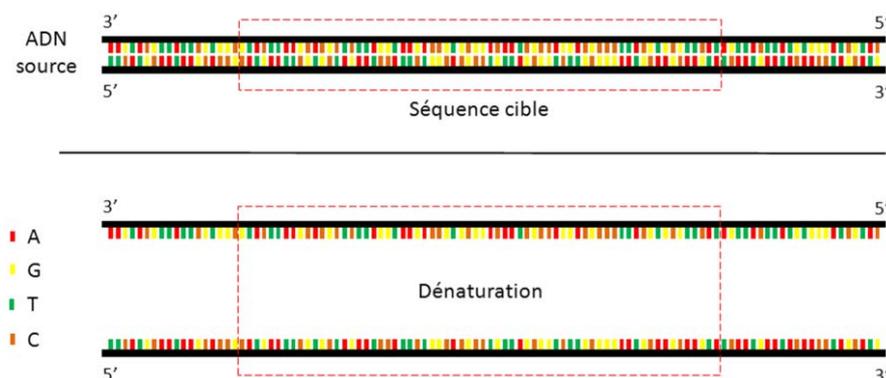


Figure V.3 : La première étape de la PCR à 95°C : la dénaturation

V.B.2.1.2. L'hybridation

La seconde étape est l'hybridation de l'amorce sur les brins d'ADN. Les amorces sont de petits brins d'ADN d'environ 20 bases organisées en fonction des séquences d'ADN à dupliquer. Elles sont un fragment complémentaire de l'ADN cible comme le présente la Figure V.4. Les amorces s'hybrident aux monobrins d'ADN grâce à la complémentarité des bases et

délimitent la région d'ADN à amplifier. Comme leur nom l'indique, elles servent d'amorce pour la synthèse du brin. Leur extrémité 3', de liaison (OH) libre, sert de point de départ pour la copie du brin d'ADN cible par l'enzyme (étape suivante). Le choix des amorces est donc primordial pour la réalisation de la réaction de PCR et est fonction de la séquence d'ADN cible à dupliquer. La température d'hybridation est constante et est choisie en fonction des amorces, généralement entre 50 et 60°C.

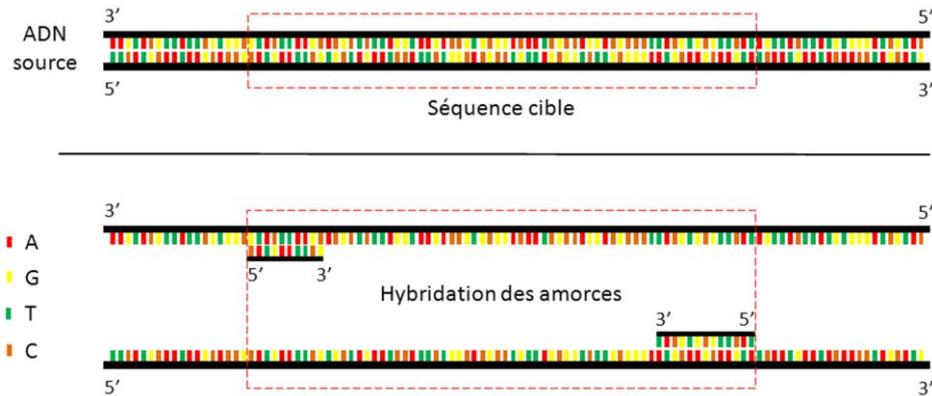


Figure V.4 : La seconde étape de la PCR : l'hybridation. La température dépend des amorces et est généralement comprise entre 50 et 60 °C

V.B.2.1.3. L'élongation

La troisième étape est celle d'élongation. Maintenant que le point de départ est fixé par l'étape d'hybridation de l'amorce, il reste à synthétiser la suite du monobrin pour former deux doubles brins. La Taq polymérase est une enzyme capable de synthétiser l'ADN de l'extrémité 5' vers l'extrémité 3'. Les enzymes utilisées en PCR sont extraites de bactéries vivant naturellement à des températures élevées comme les sources hydrothermales. Cette particularité est nécessaire car l'enzyme doit pouvoir résister aux passages successifs à la température la plus élevée, celle de dénaturation. Les premières enzymes polymérases utilisées provenaient d'une bactérie thermophile résistante à des températures élevées comme par exemple la Taq polymérase, la Pfu polymérase, la Tli polymérase ou encore la Tth polymérase.

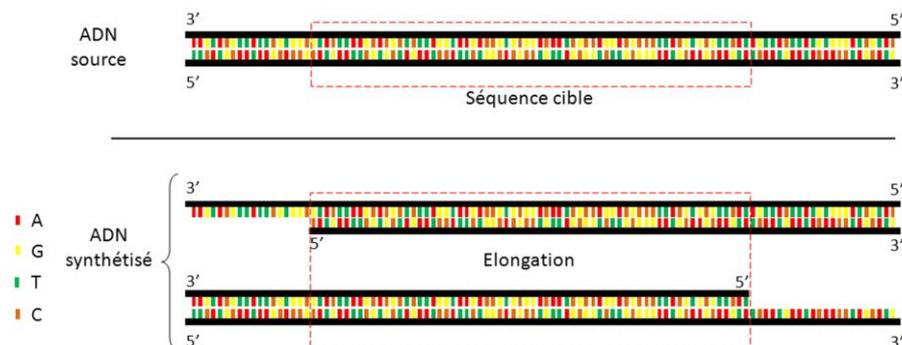


Figure V.5 : La troisième étape de la PCR : l'élongation

Pour synthétiser la suite du monobrin (Figure V.5), l'enzyme a besoin de nucléotides. Ces derniers sont placés en excès dans la solution de réaction et l'enzyme va « piocher » les différents nucléotides nécessaires à la recombinaison du brin d'ADN.

Cette étape intervient à une température fonction de l'enzyme utilisée. La durée de l'étape dépend de la taille de l'ADN cible à dupliquer et de la vitesse de synthèse de l'enzyme. Typiquement, avec la Taq polymérase, la température optimale est 72°C et l'ordre de grandeur classique retenu est de 30 secondes pour la copie de 1000 paires de base.

V.B.2.2. Conséquence et cycles suivants

Après un cycle de PCR, nous remarquons qu'à partir d'une double hélice d'ADN, sont synthétisées deux doubles hélices (Figure V.5). Cependant, la taille de celles synthétisées ne correspondent pas à la taille de la séquence cible. En effet, si l'on sait où l'enzyme commence à travailler (à partir de l'amorce) on ne sait pas encore où elle s'arrête. Au cycle suivant, nous obtenons les doubles hélices présentées à la Figure V.6. Comme nous pouvons l'observer, nous n'obtenons toujours pas les séquences ADN attendues. Ce n'est qu'à partir du troisième cycle que les premières doubles hélices spécifiques apparaissent. En effet, les séquences sont présentées à la Figure V.7 et les deux cercles rouges nous indiquent les deux doubles hélices synthétisées correspondantes à la séquence cible. A la fin du quatrième cycle, nous obtenons quatre séquences cibles synthétisées, puis 8 au cinquième cycle, 16 au sixième cycle etc... Au cours des cycles suivants, il s'ensuit une multiplication des séquences cibles qui obéit à une loi exponentielle alors que les séquences synthétisées non spécifiques suivent une loi de multiplication linéaire (2 au premier cycle, 4 au second, 6 au troisième, 8 au quatrième...). La proportion de séquences cibles synthétisées dépasse ainsi rapidement celle des séquences non spécifiques. L'avantage de la réaction est que les séquences nouvellement créées servent de support de synthèse pour le cycle suivant.

La PCR est donc une réaction biologique « puissante » qui permet, à partir d'un échantillon complexe et peu abondant, d'obtenir une quantité importante et exploitable d'un segment précis d'ADN.

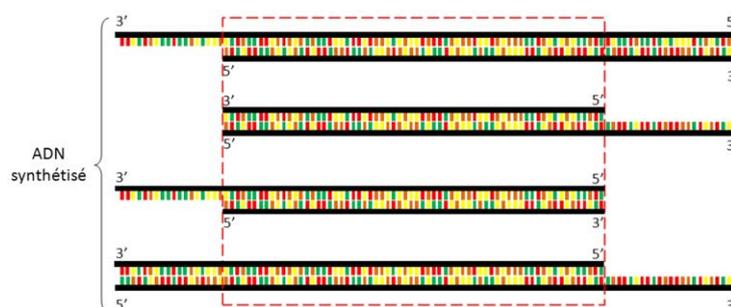


Figure V.6 : Résultat après le deuxième cycle de PCR. L'encadré rouge pointillé correspond à la séquence cible

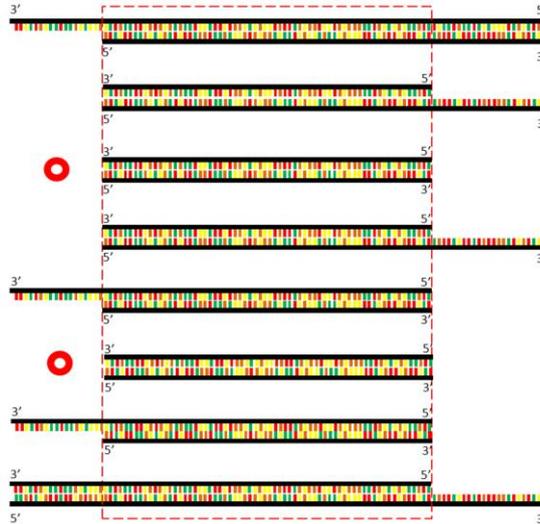


Figure V.7 : Résultat après le troisième cycle de PCR. L'encadré pointillé rouge correspond à la séquence cible.

V.B.3. Applications de la PCR

Il serait difficile de citer tous les domaines d'applications de la PCR, tellement il en existe. Dans tous les cas, cette réaction consiste à rendre décelable, et de ce fait analysable, de l'ADN souvent présent à l'état de traces dans les échantillons. La PCR n'a donc pas d'applications directes en soi mais est nécessaire avant la détection et l'analyse d'échantillons.

La PCR est donc indispensable dans de nombreux domaines tels que le diagnostic virologique, le diagnostic prénatal, le clonage acellulaire, la médecine légale, l'oncologie, la criminologie, le séquençage... [5] [6]. Nous pouvons décomposer l'utilisation de la PCR en deux grandes parties :

- Application directe : la PCR est utilisée de manière autonome à des fins d'analyses grâce à sa spécificité d'amplification évoquée auparavant.
- Application indirecte : la réaction sert uniquement d'étape d'amplification au sein d'un protocole complet.

V.B.3.1. Application indirecte

La réaction de PCR est très utilisée dans les applications de séquençage. En effet, le protocole peut être modifié pour obtenir finalement une gamme de fragments d'ADN. Cette dernière est fonction de la séquence complète du brin original ce qui permet, en outre, la détection de mutations comme en médecine légale ou encore les tests de paternité [7]. La PCR trouve aussi des applications dans la mutation pour étudier par exemple la fonction d'un gène. La mutation peut être introduite dans le gène par l'intermédiaire d'amorces mutées ou par des enzymes polymérases induisant des erreurs lors de la synthèse de l'ADN.

La PCR est aussi utile pour cloner des gènes. En effet, la séquence cible peut être amplifiée puis insérée dans un « vecteur », comme par exemple les plasmides, lui-même inséré dans un organisme. Ce dernier devient alors un organisme génétiquement modifié et va exprimer le gène cible ce qui permet une meilleure étude du gène. De plus, les organismes génétiquement modifiés sont aujourd'hui très utilisés pour produire des produits biologiques tels que des médicaments.

V.B.3.2. Application directe

Au-delà de la simple amplification d'ADN spécifique, des étapes antérieures et postérieures peuvent s'intégrer à la PCR ce qui la rend très attractive. En effet, la PCR couplée à la transcription inverse (RT-PCR pour Reverse Transcriptase PCR) est une technique qui amplifie de l'ADN complémentaire (ADNc) issue d'une transcription inverse d'acides ribonucléiques messagers (ARNm) contenus dans des cellules. La multiplication de l'ADNc permet, après analyse, de détecter la présence du gène cible et de déterminer son expression dans les cellules étudiées. D'autres parts, les ARNm sont présents en plus grand nombre dans une cellule que l'ADN génomique présent à hauteur d'une seule copie. La transcription inverse de l'ARNm en ADNc permet alors une plus grande quantité de départ et donc une plus grande sensibilité de cette technique pour détecter des gènes précis.

La PCR quantitative est l'application la plus élémentaire de la PCR. Elle consiste simplement à évaluer les produits de l'amplification. Il existe plusieurs techniques de PCR quantitative telles que la PCR en point final ou la PCR en temps réel, que nous allons brièvement présenter.

La PCR en point final est la première technique quantitative qui a vu le jour. Elle est généralement effectuée par ajout, suite à la réaction, de produits qui fluorescent lorsqu'ils sont fixés sur des doubles hélices d'ADN comme le Bromure d'Éthidium (BET) par exemple. La mesure peut être réalisée directement par fluorescence induite par laser [8] ou plus communément par migration de l'ADN amplifié sur gel d'agarose ce qui permet, en plus de la quantification, une vérification de la taille de l'ADN dupliqué.

La PCR en temps réel (ou PCR quantitative : qPCR) est une technique plus récente que la précédente. Comme son nom l'indique, elle a l'avantage de suivre en temps réel et à chaque cycle de la réaction, l'évolution de la quantité d'ADN amplifiée. La cinétique de la PCR présente deux caractéristiques : l'amplification n'est pas exponentielle pendant toute la durée de la réaction et la quantité finale d'ADN amplifié n'est pas proportionnelle à la quantité initiale d'ADN. Un des avantages majeurs de la PCR en temps réel est qu'elle permet d'obtenir une quantification absolue ou relative de la quantité initiale d'ADN cible (ou ARN dans le cas d'une RT-PCR en temps réel) ce qui était très difficile à obtenir avec une PCR en point final. Le suivi de la réaction est réalisé ici aussi par mesure de fluorescence et l'est généralement avec des séquences ADN plutôt courtes de l'ordre de grandeur d'une centaine de paires de bases. Les fluorophores utilisés peuvent être spécifiques ou non de la séquence d'ADN ciblée.

Concernant les non spécifiques, le plus utilisé est le SybrGreen [9], qui fluoresce fortement lorsqu'il est intercalé dans des doubles hélices d'ADN. D'autres marqueurs existent comme le BET, déjà cité, mais le SybrGreen présente par exemple une sensibilité dix fois supérieure à celle du BET. Ce type de marqueur est bien compatible avec la réaction de PCR pour détecter une séquence cible. En effet, la spécificité de la réaction, et donc de la détection, est garantie par le choix des amorces.

Pour une double spécificité, des marqueurs spécifiques à l'ADN cible existent tels que les sondes d'hybridation, les sondes d'hydrolyses, les sondes « molecular beacons », les sondes scorpions...avec des modes de fonctionnement différents. Nous n'allons pas tous les détailler mais nous allons cependant présenter l'une des plus connues. Les sondes d'hybridation sont composées d'un oligonucléotide complémentaire à la séquence que l'utilisateur souhaite amplifier. A l'extrémité 5' se trouve un fluorophore, appelé « reporter » et en 3' par un autre type de fluorophore appelé « quencher ». Le spectre d'émission du « reporter » chevauche celui d'excitation du « quencher » [10]. L'émission du « reporter » est initialement atténuée par la proximité du « quencher ». Lors de la phase d'hybridation pendant la réaction de PCR, la sonde se lie au monobrin d'ADN. Pendant l'étape d'élongation du monobrin, l'ADN polymérase dégrade la sonde ce qui induit la séparation du « quencher » et du « reporter ». Les deux fluorophores n'étant plus liés ensemble, l'émission du « reporter » sera observable. L'augmentation du signal est proportionnelle au nombre de copies des séquences AD spécifiques. Un exemple de sonde d'hybridation bien connue est la sonde Taqman [11]. Cette méthode de quantification par marqueurs spécifiques présente un double niveau de spécificité et assure une sécurité supplémentaire quant à l'ADN amplifié. En effet, le choix des amorces permet de sélectionner l'ADN cible à amplifier et le marqueur spécifique ne fluoresce qu'en présence de l'ADN cible. De plus, il est possible, dans un même milieu réactionnel, d'amplifier différentes séquences ADN et de repérer indépendamment le résultat de chaque duplication à l'aide de fluorophores émettant à des longueurs d'onde différentes.

Avec les propriétés de multiplexage de la PCR quantitative, nous amplifions souvent le gène d'intérêt avec un gène de référence dont le niveau d'expression est connu dans l'échantillon. Il est ainsi possible de mesurer l'expression du gène cible. Cette technique permet de déterminer, par exemple, si une personne est porteuse ou non d'un gène de prédisposition à une maladie telle que les mutations des gènes BRCA1 et BRCA2 du cancer du sein héréditaire chez la femme [12]. Un autre exemple dans le domaine médical est la détection de l'infection de cellule par un virus tel que le VIH. La PCR est aujourd'hui reconnue par une grande majorité des agences sanitaires pour tester la qualité de la nourriture. Elle présente les avantages de rapidité et d'un faible coût si nous la comparons aux méthodes traditionnelles de culture de bactéries. Elle est, par exemple, utilisée dans l'industrie agroalimentaire pour déceler la présence de bactéries pathogènes telles que la *Salmonella enterica* et l'*E.Coli*.

V.B.3.3. Thermocycleurs classiques

Les premières réactions de PCR étaient réalisées dans des bains-marie en transférant les tubes de réactions entre trois cuves stabilisées en température ce qui représente une tâche chronophage et répétitive. Le premier thermocycleur a été développé par la société PECL en 1987 avec, comme système chauffant, un module à effet Peltier régulé en tension de manière automatique pour contrôler la température ainsi que les durées des étapes. De nos jours, la plupart des thermocycleurs fonctionnent toujours sur ce principe.

Neuf ans plus tard, en 1996, est commercialisé le premier appareil de PCR quantitative en temps réel par la société Applied Biosystems : le ABI7700. De nombreux systèmes commerciaux de PCR en temps réel naissent alors dont la majorité est consacrée à l'analyse à haut débit avec des plaques contenant typiquement 25 à 384 puits. L'élément chauffant est toujours à base de Peltier, les puits sont éclairés par un laser ou une combinaison de lampes à large spectre et de filtres et des barrettes CCD assurent la détection.

Parallèlement, de nouveaux systèmes plus flexibles apparaissent, au détriment du haut débit, avec des techniques originales d'échauffement, de manipulation de liquides ou de détection. Citons le Corbett Rotor Gene (commercialisé par la société Qiagen) qui centrifuge les tubes et les échauffent par flux d'air induisant une parfaite uniformité thermique. Notons aussi le Light Cycler commercialisé par Roche et développé par Idaho Technologies [13]. Le système est réalisé à partir de capillaires de 20 à 100µl installés dans un module tournant et chauffés aussi par flux d'air ce qui permet d'obtenir des vitesses d'échauffement et de refroidissement de l'ordre de 20°C.s⁻¹ et de réduire les temps de réaction à une trentaine de minutes contre plus de deux heures pour les thermocycleurs classiques.

V.C. La PCR et la microfluidique

V.C.1. Miniaturisation et enjeux

La miniaturisation de la réaction de PCR est un enjeu important. En effet, nous imaginons très bien l'importance de l'intégration de cette réaction sur un microsystème combinant plusieurs fonctions pour des diagnostics médicaux, la détection microbienne ou toute autre analyse biologique. Parmi les nombreux dispositifs d'analyse miniaturisés, ceux concernant la réaction de PCR sont étudiés et améliorés sans cesse depuis une vingtaine d'années environ, époque à laquelle les concepts de microTAS et de laboratoire sur puce commencent à émerger. Depuis, une multitude de systèmes ont vu le jour grâce, notamment, à l'avancée de la microfluidique. Au-delà des avantages inhérents à tous les systèmes microfluidiques présentés au premier chapitre, tel que la réduction des volumes des réactifs, la miniaturisation de la PCR permet d'accélérer les temps de thermalisation tout en diminuant la consommation d'énergie nécessaire. De plus, il a été montré très tôt que des variations rapides de la température améliorent la spécificité ainsi que l'efficacité de la réaction [14], ce que les microsystèmes sont capables d'obtenir de par leur faible inertie thermique.

V.C.2. La PCR microfluidique

Nous ne pouvons pas, dans ce manuscrit, couvrir en détails le champ immense que représente la PCR en microfluidique. Le lecteur pourra s'intéresser à différentes revues pour plus de détails [15] [16] [17] [18] [19] [20] [21]. Néanmoins, nous pouvons citer et présenter quelques systèmes phares. En excluant les systèmes basés sur des capillaires qui sont à la base du Light Cycler [13] [22], il est possible de dater les premiers systèmes de PCR microfluidique aux années 1993 et 1994 [23] [24]. Le principe était basé sur une microchambre en silicium placée sur un module à effet Peltier. Le faible volume de la chambre réactionnelle couplé à la bonne conductivité thermique du silicium ont permis l'accélération des variations de température. Le premier système de PCR en flux continu date des mêmes années [25]. Le fluide s'écoule dans un capillaire qui traverse plusieurs zones de température. Quelques années plus tard, cette technique fût intégrée sur une puce microfluidique aboutissant à une rapidité de réaction alors inégalée [26]. Vingt cycles de PCR sont réalisés et des séquences de 176 paires de base sont dupliquées avec différentes vitesses d'écoulement, ce qui entraîne des temps de réaction totale de 90 secondes à 18,7 minutes. Depuis, la microfluidique a progressé et de nombreux systèmes PCR microfluidique ont été présentés dans la littérature. Les principaux microsystèmes développés le sont en chambre ou en flux continu ce qui évite l'évaporation des réactifs. Les systèmes en chambre ont l'avantage d'avoir la possibilité de multiplier les chambres sur une même puce avec d'autres étapes intégrées à la PCR. Cependant, du fait du grand rapport surface/volume des systèmes microfluidiques, des traitements de surface sont souvent indispensables au bon déroulement de la réaction pour empêcher l'adsorption des réactifs et la contamination du dispositif. De plus, du fait du profil

parabolique de l'écoulement, les réactifs de la PCR passent plus de temps près des parois qu'au centre du canal ce qui provoque des problèmes d'optimisation de la réaction [15].

Les systèmes microfluidiques discrets sont intéressants pour éviter ces problèmes et les systèmes diphasiques en canaux ont déjà montré leurs potentiels [27]. Les réactifs sont confinés dans des gouttelettes indépendantes s'écoulant dans de l'huile ce qui permet, en outre, de limiter la contamination entre les échantillons ou encore de limiter l'adsorption des réactifs et des produits à la surface [28] [29]. Bien que les systèmes diphasiques soit encore à un stade précoce de leur développement, les travaux ont démontré la faisabilité et un grand potentiel notamment pour les opérations à haut débit et celles à cellule ou à molécule unique. Les études actuelles portent sur le contrôle de la trajectoire des gouttelettes, leurs interactions avec les parois ou encore les gouttes satellites créées pendant l'émulsion [15].

À propos des systèmes PCR microfluidiques discrets sur substrat plan, les études sont nettement moins nombreuses. Cependant, celles-ci ont montré les capacités de la technologie EWOD telles que des temps d'échauffement et de refroidissement rapide, une faible consommation de réactifs ainsi qu'une faible consommation électrique [30]. R. Sista *et al.* [31] ont exposé un système portable de diagnostic intégrant plusieurs fonctions telles que l'immunodosage, la préparation des échantillons et la PCR. Il a été montré que 40 cycles de PCR peuvent être effectués en 12 minutes en déplaçant la goutte entre deux zones de température différente. Z. Hua *et al.* [32] ont présenté un système microfluidique PCR multiplexe, capable de réaliser plusieurs réactions indépendamment et simultanément, en temps réel combiné à la technologie EWOD. En utilisant la détection par fluorescence ainsi que des billes paramagnétiques, couramment utilisées pour capturer ou immobiliser l'ADN cible, le système effectue des amplifications parallèles et multiples d'ADN et a révélé une efficacité d'amplification remarquable de 94,7%. Concernant la technologie microfluidique à onde élastique de surface, une seule étude a été publiée et date de 2005.

V.C.3. La PCR assistée par onde élastique de surface

Le premier dispositif de PCR microfluidique à base d'onde élastique de surface est présenté par Z. Guttenberg *et al.* [33]. L'échauffement de la goutte n'est pas, dans cette étude, effectué par les ondes élastiques de surface. Ces dernières permettent uniquement le déplacement du fluide vers deux zones distinctes de réaction et d'analyse tandis que l'échauffement des gouttes est obtenu par une résistance chauffante en forme de spirale réalisée par pulvérisation cathodique de platine et par photolithographie (Figure V.8). Il est montré que le dispositif est capable d'effectuer l'amplification d'ADN rapidement (30 cycles de PCR en 10 minutes avec des séquences spécifiques de 150 paires de base) avec des volumes réactionnels de 200nl.

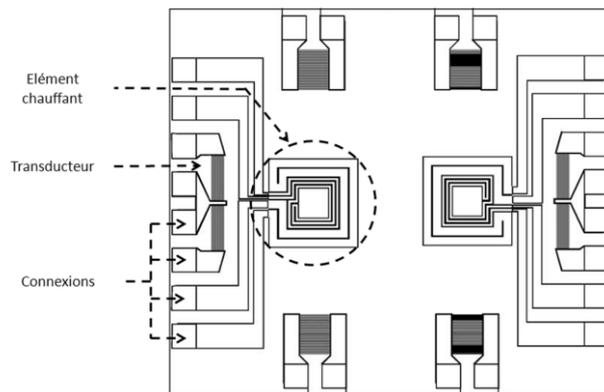


Figure V.8 : Dispositif de l'équipe de Z.Guttenberg [33] à base d'onde élastique de surface

Cependant, pour éviter l'évaporation, la goutte contenant les réactifs est couverte par une seconde goutte de 5 μ l d'huile. Cette solution, efficace, peut devenir gênante si la récupération du milieu réactionnel sans huile est nécessaire pour une étape ultérieure sur la puce. Par ailleurs, la température sur l'élément chauffant est présentée par les auteurs et varie entre 80 et 100°C pour une consigne de 95°C. Cet écart par rapport à la consigne, peut entraîner des complications lors des étapes d'hybridation et d'élongation pendant la PCR où une température précise et stable est parfois indispensable en fonction des réactifs. Pour finir, dans l'optique de futurs systèmes complets et autonomes, il est important de minimiser l'électronique de commande et d'analyse ce qui impacte directement le coût final du produit. Or, ce dispositif nécessite deux alimentations différentes : l'une sinusoïdale pour exciter les transducteurs et déplacer les gouttes et l'autre à courant continu réglable pour alimenter la résistance chauffante et échauffer les fluides.

Le lecteur l'aura compris. Le dispositif étudié au quatrième chapitre se présente comme une alternative pour échauffer des gouttes et réaliser des cycles de PCR tout en prenant en compte les remarques précédentes. Il est possible d'adapter tous les transducteurs d'un dispositif à onde élastique afin de générer des ondes de même fréquence. L'électronique de commande serait ainsi limitée. La température des gouttes ainsi que l'uniformité de la température ont été étudiées au quatrième chapitre et l'échauffement nécessite des liquides ayant une certaine viscosité ce qui permet de limiter le phénomène d'évaporation lors de l'échauffement. Au-delà des avantages que peut présenter notre dispositif, des précautions sont tout de même à prendre. En effet, la viscosité du milieu réactionnel et l'impact des ondes élastiques de surface sur le liquide peuvent influencer la capacité des espèces biologiques de la PCR à réaliser leur mission, ce que nous allons tenter d'explorer dans la prochaine partie.

V.D. Résultats

Dans cette partie, nous présenterons l'effet de la viscosité sur le milieu réactionnel nécessaire à la PCR et nous verrons l'avantage de l'utilisation de notre dispositif dans le cas de liquides visqueux. Nous déterminerons ensuite si l'irradiation des ondes élastiques de surface sur le milieu réactionnel influence ou non les réactifs de la PCR ce qui permettra de conclure quant à la compatibilité entre les ondes élastiques et les espèces biologiques.

V.D.1. Effet de la viscosité du milieu réactionnel

L'objectif, ici, est d'étudier l'effet de la viscosité du milieu réactionnel sur le rendement de la PCR. Pour cela, nous allons effectuer des cycles de PCR à l'aide d'un thermocycleur standard à effet Peltier avec des échantillons plus ou moins visqueux. Nous quantifierons ensuite la duplication de ces échantillons visqueux et les comparerons à un échantillon classique.

V.D.1.1. Echantillons de PCR classiques

Les échantillons classiques, préparés par l'équipe du professeur Becuwe, sont composés des éléments biologiques présentés au Tableau V.1. L'ADNc MCF7 est obtenu à partir d'une transcription inverse d'une solution de 20 μ L contenant 1 μ g d'ARNm de cellule cancéreuse mammaire. Le tampon (20mM Tris/HCl pH 8,4, 50mM KCl) sert à stabiliser le pH du milieu réactionnel à un niveau stable et optimal pour la Taq. Le MgCl₂ est un cofacteur indispensable pour la réaction de polymérisation avec la Taq. Les cations Mg²⁺ vont neutraliser les charges négatives des groupements phosphates au niveau de l'ADN et ainsi stabiliser l'hybridation des dNTPs à l'ADN. Les unités U et X sont des unités qui dépendent de l'élément biologique considéré. Pour la Taq, par exemple, une unité (1U) correspond à la quantité d'enzyme permettant l'incorporation de 10-15nmol de dNTP dans un fragment d'ADN en 30 minutes à 75°C.

ADNc	Taq polymérase	Amorce 1	Amorce 2	dNTP	MgCl ₂	Tampon	Eau
0,4 μ L	0,1U	0,4 μ M	0,4 μ M	0,2mM	1,5mM	1X	17,2 μ L

Tableau V.1 : Les différents réactifs de la PCR pour un échantillon classique

Pour finir, de l'eau complète la solution afin d'obtenir un volume réactionnel final précis. Ici, les différents réactifs du Tableau V.1 mélangés ensemble forment une solution de 2,8 μ L. Pour un volume final de 20 μ L que nous utiliserons dans cette partie, il est nécessaire d'ajouter 17,2 μ L d'eau.

Nous pouvons considérer les échantillons classiques du Tableau V.1 de viscosité égale à celle de l'eau, c'est-à-dire 1,005mPa.s à 20°C. En effet, tous les réactifs sont fournis en solution aqueuse sauf la Taq polymérase. Cette dernière est vendue en solution glycérolée mais compte tenu de la faible proportion dans le mélange réactionnel final, nous pouvons négliger la présence de glycérol.

V.D.1.2. Echantillons de PCR visqueux

Afin de rendre les échantillons de PCR précédents visqueux, nous avons remplacé l'eau par des mélanges eau/glycérol. Nous obtenons ainsi des mélanges dont les viscosités sont les suivantes : 1,005 – 1,31 – 2,5 – 3,7 – 6 – 11 – 22 – 60 – 109 mPa.s.

V.D.1.3. Protocole expérimental : PCR et quantification

Les échantillons précédents subissent alors des cycles de PCR dans un thermocycleur classique. Le thermocycleur utilisé est de marque Biorad de référence MyCycler fonctionnant à base d'élément Peltier. Les étapes thermiques de ce thermocycleur sont les suivantes :

- 3 minutes et 30 secondes à 94°C. Avant de commencer les cycles de PCR, une première étape de chauffage est réalisée. Elle permet de dénaturer l'ADN double brin, d'homogénéiser le milieu réactionnel par agitation thermique, d'activer les polymérases et de dénaturer d'autres enzymes qui pourraient être présentes dans la solution tels que ceux de la transcription inverse.
- 28 cycles de 3 étapes (30 secondes à 94°C, 30 secondes à 45°C et 30 secondes à 72°C) présentés précédemment.
- 10 minutes à 72°C. Cette étape, appelée élongation finale, est réalisée pour s'assurer que tout l'ADN simple brin restant soit complètement synthétisé.

Les produits de la réaction ont ensuite été quantifiés par une méthode standard de migration des brins d'ADN par électrophorèse dans du gel d'agarose (1g d'agarose dans 100ml de TBE (Tris Borate EDTA (acide éthylène diamine tétraacétique))). Du bromure d'éthidium (BET) est ajouté dans chaque échantillon qui, rappelons-le, fluoresce en présence de double hélice d'ADN. Les molécules d'ADN étant chargées négativement, elles migrent dans le gel conducteur d'agarose de la cathode vers l'anode lorsqu'elles sont soumises à un champ électrique (ici, 80V). La distance de migration par rapport à la ligne de dépôt est caractéristique de la taille de la séquence ADN amplifiée. Le gel d'agarose est finalement placé sous UV, le BET étant excité à 254nm. Une photographie est ensuite capturée afin de quantifier les produits de la réaction grâce à un logiciel approprié.

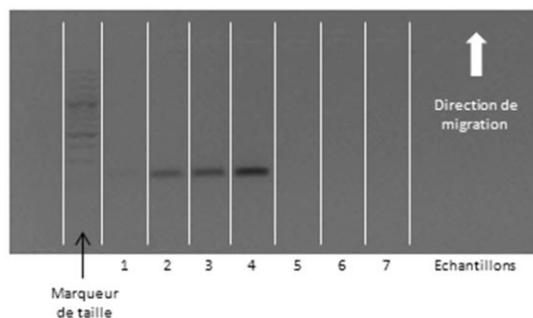


Figure V.9 : Photographie de la migration de double hélices d'ADN dans du gel d'agarose

V.D.1.4. Conséquences de la viscosité

La Figure V.9 présente un exemple de cliché d'une des migrations des échantillons dans du gel d'agarose que nous avons obtenues. Chaque tache représente la migration d'ADN amplifié d'un échantillon. La colonne de gauche est un marqueur de taille et sert de référence pour estimer la taille des brins d'ADN amplifiés. On observe que toutes les taches se trouvent au même niveau ce qui signifie que les brins d'ADN amplifiés ont tous la même taille. Cependant, les taches ont une intensité différente nous informant que la quantité des brins d'ADN n'est pas la même dans chaque échantillon et que, par conséquent, la viscosité du milieu modifie le rendement de la PCR. Pour quantifier ces différences, un logiciel de traitement d'image nous permet de déterminer l'intensité de la fluorescence de ces taches en mesurant l'intensité de chaque pixel.

Le niveau de fluorescence en fonction de la viscosité du milieu réactionnel est présenté à la Figure V.10. L'intensité de chaque échantillon est normalisée par rapport à l'intensité de l'échantillon classique de viscosité égale à celle de l'eau (1,005mPa.s). Cette dernière a donc une fluorescence normalisée unitaire. Nous observons que la fluorescence chute avec la viscosité. A 6mPa.s, la fluorescence est proche de zéro et aux viscosités supérieures, elle est nulle. Ce comportement nous indique que la réaction de PCR n'a plus lieu au-delà d'une viscosité de 6mPa.s. En effet, à faible viscosité, les réactifs sont libres de se déplacer et peuvent interagir avec leurs voisins. Lorsque la viscosité augmente, les espèces biologiques sont de moins en moins mobiles dans la solution et les interactions avec les autres réactifs sont plus difficiles. La réaction de PCR est de ce fait ralentie comme on peut le constater sur la Figure V.10 lorsque la viscosité est comprise entre 1 et 6mPa.s. Au-delà, la probabilité de rencontre des réactifs est très faible et la réaction de PCR n'a plus lieu à cette échelle de temps.

Ce comportement, dans un premier temps, nous est défavorable. En effet, nous avons vu au quatrième chapitre que la viscosité minimum des gouttes doit être supérieure à 10,8mPa.s pour les échauffer par notre dispositif à ondes élastiques de surface et atteindre des températures comparables à celles de la PCR. Cependant, il est important de faire la

différence entre les deux techniques d'échauffement. Celle du thermocycleur classique l'est par effet Peltier. Typiquement, il se trouve 2, 4 ou 6 éléments Peltier dans la chambre de réaction en fonction de la gamme du thermocycleur. Il en découle un gradient thermique faible et donc un échauffement principalement par conduction. Même si une faible convection doit exister, celle-ci n'est pas suffisante pour favoriser la rencontre des réactifs pour des liquides de viscosité supérieure à 6mPa.s vu, que la réaction de PCR n'a pas lieu (Figure V.10). Avec notre système à ondes élastiques, l'échauffement dû à l'atténuation des ondes dans la goutte se propage principalement par convection forcée induite par le mélange interne. Ce mélange interne à la goutte serait ainsi favorable à la rencontre des réactifs pendant les cycles thermiques et permettrait, par conséquent, la réalisation de la réaction de PCR en milieu visqueux.

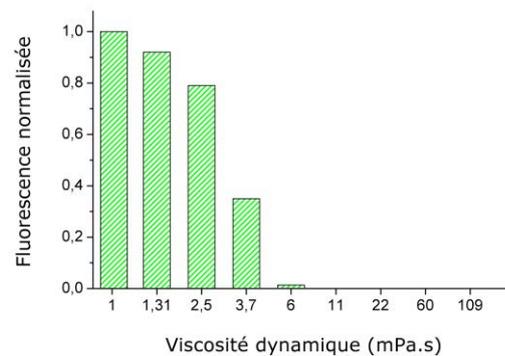


Figure V.10 : Fluorescence en fonction de la viscosité dynamique du milieu réactionnel. La fluorescence de tous les échantillons est normalisée par rapport à celle de l'échantillon classique de PCR de viscosité égale à celle de l'eau (1,005mPa.s représenté par une viscosité de 1mPa.s pour plus de lisibilité)

V.D.2. Effet des ondes élastiques de surface

L'interaction entre une onde élastique de surface de Rayleigh et une microgoutte induit une onde longitudinale dans le liquide. Il en résulte une pression de radiation acoustique et un écoulement interne qui peuvent intervenir sur le comportement des réactifs de la PCR. En effet, l'onde longitudinale, au niveau atomique, se propage par dilatations et compressions successives des plans atomiques dans le liquide. Il est donc envisageable qu'une onde longitudinale assez énergétique puisse dégrader ou détruire un ou plusieurs des réactifs et ainsi limiter, voire compromettre, la réaction de PCR. Nous allons tenter de vérifier ce point.

V.D.2.1. Protocole expérimental

V.D.2.1.1. Protocole global

La propagation des ondes longitudinales dans le liquide, à l'origine de l'écoulement interne et nécessaire pour augmenter la probabilité de rencontre des réactifs dans les milieux visqueux (V.D.1), peut finalement avoir un effet néfaste vis-à-vis de la réaction de PCR. Nous

avons ainsi décidé d'étudier ce point. Le protocole expérimental est présenté sous forme d'organigramme à la Figure V.11 et sera présenté en détail à la suite. Globalement, l'objectif est de déterminer si les ondes longitudinales, induites par l'interaction entre les ondes élastiques et le liquide, influent sur les réactifs de la PCR. Pour cela, des échantillons standards de PCR vont être irradiés par des ondes élastiques de surface avant un traitement classique de PCR par un thermocycleur commercial. Suivra une migration traditionnelle des brins d'ADN par électrophorèse dans du gel d'agarose avant la quantification. La comparaison des quantifications par rapport à celles d'échantillons de référence non irradiés nous indiquera si les ondes longitudinales induites par les ondes élastiques de surface sont compatibles avec les réactifs.

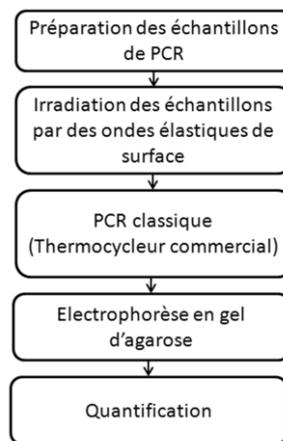


Figure V.11 : Organigramme du protocole expérimental.

Nous tenons à bien préciser que notre dispositif à ondes élastiques de surface n'est pas, ici, utilisé dans le but de réaliser des cycles de PCR mais utilisé pour « irradier » le milieu réactionnel et donc, les espèces biologiques de la PCR.

V.D.2.1.2. Protocole détaillé

V.D.2.1.2.1. Préparation et irradiation d'échantillons de PCR

Nous allons maintenant préciser le protocole expérimental. Les échantillons classiques de PCR ont été préparés tels que présenté au Tableau V.1 pour un volume final de 10 μ l puis placés sur notre dispositif à transducteur enterré (Figure V.12). Les échantillons subiront des cycles de PCR par un thermocycleur classique après irradiation par des ondes élastiques de surface. La viscosité des échantillons doit donc être la plus faible possible, soit celle de l'eau (1,005mPa.s) (Figure V.10).

L'amplitude des ondes longitudinales dans la goutte est directement proportionnelle à celle de l'onde élastique de surface, elle-même liée à la puissance électrique injectée au transducteur. Nous avons donc excité le transducteur avec des signaux de différentes puissances pendant 5 minutes. La puissance a ensuite été fixée et la durée d'irradiation modifiée afin de vérifier si le temps d'irradiation affecte aussi les réactifs de la PCR. La

viscosité des échantillons étant la plus faible, la pression de radiation acoustique et le mélange interne sont alors des plus intenses. En augmentant la viscosité, la pression de radiation et le mélange interne sont amoindris ce qui signifie que dans le cas où les ondes élastiques de surface n'affecteraient pas les réactifs de la PCR à faible viscosité, elles n'affecteront pas non plus les réactifs de la PCR à des viscosités supérieures.

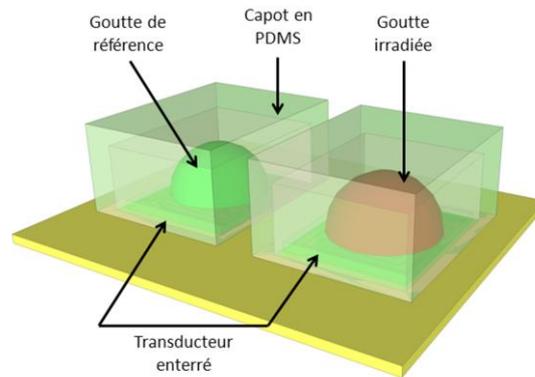


Figure V.12 : Dispositif expérimental permettant d'irradier les échantillons de PCR.

V.D.2.1.2.2. PCR classique et quantification traditionnelle

Nous avons ensuite déterminé si, suite à l'irradiation des échantillons, les réactifs ont été affectés ou non. Pour cela, ces derniers ont subi des cycles de PCR dans à l'aide du thermocycleur classique. Les produits de la réaction ont ensuite été quantifiés comme décrit auparavant au V.D.1.3.

Tous les échantillons irradiés par des ondes élastiques ont été doublés par des échantillons de référence non irradiés mais soumis aux mêmes conditions expérimentales (Figure V.12) dans le but de comparer ces doubles échantillons complémentaires. La viscosité des gouttes étant faible, celles-ci sont couvertes par un capot en PDMS pour éviter leur évaporation (Figure V.12).

V.D.2.2. Effet de la puissance

Le transducteur a été excité avec des signaux électriques de différentes puissances comprises entre 1W et 5W pendant 5 minutes. Les étapes suivantes de PCR classique, de migration et de quantification nous retournent les informations de la Figure V.13. La fluorescence de tous les échantillons a été normalisée par rapport à celle des échantillons de références complémentaires non irradiés. Les échantillons de références ont ainsi une fluorescence égale à l'unité. Nous remarquons, sur la figure, que les échantillons irradiés et de référence ont un niveau de fluorescence comparable. Cela signifie que les réactifs des échantillons irradiés ne sont pas, ou peu, sensibles aux ondes élastiques pour une puissance injectée au transducteur comprise entre 1W et 5W.

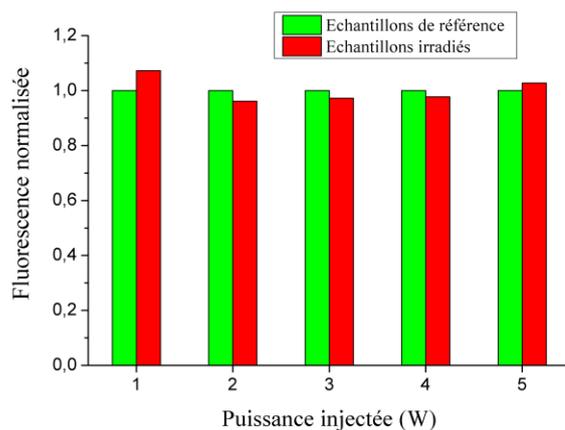


Figure V.13 : Fluorescence en fonction de la puissance injectée au transducteur enterré. La fluorescence de tous les échantillons est normalisée par rapport à celui de référence. La fluorescence des échantillons de référence est donc unitaire. La durée d’irradiation est fixée à 5 minutes.

Les nombreux pipetages des microgouttes sont susceptibles d’induire la perte d’un certain volume de la solution. De plus, lorsque les gouttes sont déposées sur le substrat, une partie des réactifs peut d’adsorber à l’interface solide/liquide. Ces circonstances engendrent une quantité de brins d’ADN qui peut varier, et donc une fluorescence fluctuante pour les échantillons irradiés (Figure V.13 et puissance injectée de 2-3-4 W) et pour les échantillons de référence (Figure V.13 et puissance injectée de 1 et 5 W). La puissance injectée maximum testée est 5W ce qui est supérieur à la puissance nécessaire de notre dispositif pour échauffer des gouttes à des températures comparables à la PCR (cf. Chapitre 4).

V.D.2.3. Effet de la durée d’irradiation

La durée d’irradiation peut aussi influencer les réactifs. Pour vérifier cela, la puissance injectée a été fixée à 3,2W et nous avons modifié la durée d’irradiation des échantillons entre 5 et 30 minutes. Les étapes suivantes de PCR classique, de migration et de quantification, nous retournent les résultats de la Figure V.14. Nous remarquons, comme précédemment, que la fluorescence des échantillons irradiés correspond à celle des échantillons de référence avec des légères différences telles qu’observées auparavant. Nous pouvons conclure que le temps d’irradiation n’a donc pas d’influence sur les réactifs de la PCR, jusqu’à des durées de l’ordre de grandeur de la PCR traditionnelle, réalisée par un thermocycleur classique.

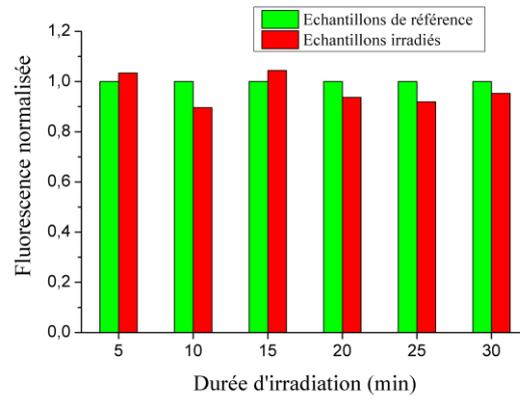


Figure V.14 : Fluorescence en fonction de la durée d'irradiation. La fluorescence de tous les échantillons est normalisée par rapport à celui de référence. La fluorescence des échantillons de référence est donc unitaire. La puissance injectée au transducteur est fixée à 3,2W.

V.E. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le principe de la réaction de PCR ainsi que l'enjeu de la miniaturisation de celle-ci. Nous avons vu que, depuis l'avènement de la microfluidique il y a plus de 20 ans, celle-ci a permis l'intégration de cette réaction au sein de laboratoires sur puce embarquant plusieurs fonctions. Avec les avancées de la microfluidique, les performances de la réaction de PCR sont continuellement améliorées, notamment à propos des durées réactionnelles drastiquement diminuées en raison de la faible inertie thermique des microsystèmes.

Un dispositif PCR à ondes élastiques de surface a été développé par l'équipe de Z.Guttenberg [33] avec lequel les gouttes contenant le mélange réactionnel de la PCR sont déplacées par les ondes élastiques et les cycles thermiques de PCR réalisés par un élément chauffant résistif en couche mince. Pour améliorer ce dispositif et éviter les différentes remarques relevées dans la partie V.C.3, telle que la séparation du milieu réactionnel et de l'huile, nous proposons le système d'échauffement de goutte étudié au quatrième chapitre.

La contrainte de l'échauffement de goutte par ondes élastiques de surface impose une viscosité du fluide supérieure à 10,8mPa.s pour atteindre des températures supérieures ou égales à la température de dénaturation de la PCR. Nous avons montré que la réaction de PCR par un thermocycleur commercial à effet Peltier, avec cette condition de viscosité, n'est pas possible. En effet, les réactifs sont figés par la viscosité du liquide et l'échauffement se fait principalement par conduction. La probabilité de rencontre des espèces biologiques est alors faible et la réaction n'a plus lieu. Notre dispositif s'avère alors avantageux dans le sens où la chaleur se propage surtout par convection forcée, ce qui augmenterait ainsi la probabilité de rencontre des réactifs et favoriserait la réaction de PCR en milieu visqueux.

Pour finir, nous avons présenté une étude vérifiant que les réactifs de la PCR ne sont pas affectés par les ondes élastiques de surface. Des échantillons classiques de PCR ont été irradiés par des ondes générées à partir de notre dispositif à transducteur enterré. Ces échantillons irradiés ont ensuite subi avec succès des cycles de réaction de PCR par un thermocycleur classique commercial ce qui nous assure que les ondes élastiques de surface n'impactent pas les réactifs de la PCR et que les deux sont ainsi compatibles. La réaction de PCR pourrait donc être réalisée à l'aide d'un système d'échauffement par ondes élastiques de surface.

Bibliographie

- [1] K. Mullis, F. Faloona, S. Scharf, R. Saiki, G. Horn et H. Erlich, «Specific enzymatic amplification of DNA in vitro : The polymerase chain reaction», Cold Spring Harbor Symposia on Quantitative Biologie, pp. 263-273, 1986.
- [2] R. Saiki, D. Gelfand, S. Stoffel, S. Scharf, E. Higuchi, G. Horn, K. Mullis et H. Erlich, «Primer-Directed Enzymatic Amplification of DNA with a Thermostable DNA Polymerase», Science, vol. 239, pp. 487-491, 1988.
- [3] R. Higuchi, G. Dollinger, P. Walsh et R. Griffith, «Simultaneous amplification and detection of specific DNA sequences», Bio/Technology, vol. 10, pp. 413-417, 1992.
- [4] J. Watson et F. Crick, «Molecular structure of nucleic acids», Nature, vol. 171, pp. 737-738, 1953.
- [5] M. Rahman, M. Uddin, R. Sultana, A. Moue et M. Setu, «Polymerase Chain Reaction (PCR): A Short Review», Anwer Khan Modern Medical College Journal, vol. 4, pp. 30-36, 2013.
- [6] M. Joshi et D. J., «Polymerase Chain Reaction: Methods, Principles And Application», International Journal of Biomedical Research, vol. 1, pp. 81-97, 2010.
- [7] J. Weber, Nouvelle méthode de détection de mutations inconnues - applications au diagnostic génétique, Thèse de doctorat de l'Université Paris 6, 2005.
- [8] R. Higuchi, G. Dollinger, P. Walsh et R. Griffiths, «Simultaneous amplification and detection of specific DNA sequences», Biotechnology, vol. 10, pp. 413-417, 1992.
- [9] H. Rye, S. Yue, D. Wemmer, M. Quesada, R. Haugland, R. Mathies, G et A. Iazer, «Stable fluorescent complexes of double-stranded DNA with bis-intercalating asymmetric cyanine dyes : properties and applications», Nucleic acids research, vol. 20, pp. 2803-2812, 1992.
- [10] P. Holland, R. Abramson, R. Watson, R. Saiki et D. Gelfand, «Detection of specific polymerase chain reaction product by utilizing the 5' to 3' exonuclease activity of thermus aquaticus DNA polymerase», Clinical chemistry, vol. 38, pp. 462-463, 1992.
- [11] C. Heid, J. Stevens, K. Livak et P. Williams, «Real time quantitative PCR», Genome research, vol. 6, pp. 986-994, 1996.
- [12] R. Scully et N. Puget, «BRCA1 and BRCA2 in hereditary breast cancer», Biochimie, vol. 84, pp. 95-102, 2002.
- [13] C. Wittwer, K. Ririe, R. Andrew, D. David, R. Gundry et U. Balis, «The lightcycler : a microvolume multisample fluorimeter with rapid temperature control», Biotechniques, vol. 22, pp. 176-181, 1997.
- [14] C. Witter et D. Garling, «Rapid cycle DNA amplification : time and temperature optimization», Biotechniques, vol. 10, pp. 76-83, 1991.
- [15] Y. Zhang et P. Ozdemir, «Microfluidic DNA amplification—A review», Analytica Chimica Acta, vol. 638, pp. 115-125, 2009.
- [16] C. Zhang, J. Xu, W. Ma et W. Zheng, «PCR microfluidic devices for DNA amplification», Biotechnology Advances, vol. 24, p. 243-284, 2006.
- [17] C. Zhang, D. Xing et Y. Li, «Micropumps, microvalves, and micromixers within PCR microfluidic chips: Advances and trends», Biotechnology Advances , vol. 25, pp. 483-514, 2007.

- [18] C. Zhang et D. Xing, «Miniaturized PCR chips for nucleic acid amplification and analysis: latest advances and future trends», *Nucleic Acids Research*, vol. 35, pp. 4223-4237, 2007.
- [19] P. Auroux, Y. Koc, A. deMello, A. Manz et P. Day, «Miniaturized nucleic acid analysis», *Lab on a chip*, vol. 4, pp. 534-536, 2004.
- [20] M. Roper, C. Easley et J. Landers, «Advances in polymerase chain reaction on microfluidic chips», *Analytical chemistry*, vol. 77, pp. 3887-3894, 2005.
- [21] Y. Sun et Y. Kwok, «Polymeric microfluidic system for DNA analysis», *Analytica chimica acta*, vol. 556, pp. 80-96, 2006.
- [22] C. Wittwer, G. Fillmore et D. Hillyard, «Automated polymerase chain reaction in capillary tubes with hot air», *Nucleic acids research*, vol. 17, pp. 4353-4357, 1989.
- [23] M. Northrup, M. Ching, R. White et R. Watson, «DNA amplification in a microfabricated reaction chamber», *Transducer 93*, 7th international conference on solid state sensors and actuators, Vols. 1 sur 2 Yokohama, Japon, pp. 924-926, 1993.
- [24] P. Wilding et M. Shoffner, «PCR in a silicon microstructure», *Clinical chemistry*, vol. 9, pp. 1815-1818, 1994.
- [25] H. Nakano, K. Matsudo, M. Yohda, T. Nagamune, I. Endo et T. Yamane, «High speed polymerase chain reaction in constant flow», *Biosciences, biotechnology and biochemistry*, vol. 58, pp. 349-352, 1994.
- [26] M. Kopp, A. de Mello et A. Manz, «Chemical amplification : continuous-flow PCR on a chip», *Science*, vol. 280, pp. 1046-1048, 1998.
- [27] M. Chabert, *Microfluidique de gouttes pour les analyses biologiques*, Thèse de doctorat de l'université Paris VI., 2007.
- [28] A. Huebner, S. Sharma, M. Srisa-Art, F. Hollfelder, J. Edel et A. DeMello, «Microdroplets: A sea of applications?», *Lab on a chip*, vol. 8, pp. 1244-1254, 2008.
- [29] S. Teh, R. Lin, L. Hung et A. Lee, «Droplet microfluidics», *Lab on a chip*, vol. 8, pp. 198-220, 2008.
- [30] Y. Chang, G. Lee, F. Huang, Y. Chen et J. Lin, «Integrated polymerase chain reaction chips utilizing digital microfluidics», *Biomedical Microdevices*, vol. 8, pp. 215-225, 2006.
- [31] R. Sista, Z. Hua, P. Thwar, A. Sudarsan, V. Srinivasan, A. Eckhardt, M. Pollack et V. Pamula, «Development of a digital microfluidic platform for point of care testing», *Lab on a chip*, vol. 8, p. 2091-2104, 2008.
- [32] Z. Hua, J. Rouse, A. Eckhardt, V. Srinivasan, V. Pamula, W. Schell, J. Benton, T. Mitchell et M. Pollack, «Multiplexed Real-Time Polymerase Chain Reaction on a Digital Microfluidic Platform», *Anal. Chem.*, vol. 82, p. 2310-2316, 2010.
- [33] Z. Guttenberg, H. Müller, H. Habermüller, A. Geisbauer, J. Pipper, J. Felbel, M. Kielpinski, J. Scriba et A. Wixforth, «Planar chip device for PCR and hybridization with surface acoustic wave pump», *Lab on a Chip*, vol. 5, pp. 308-317, 2005.

Conclusion générale et perspectives

Au cours de ce travail, nous avons présenté un système microfluidique à onde élastique de surface dans l'intention de dupliquer des séquences ADN par la réaction de PCR. Cette étude s'inscrit dans le cadre d'un projet de développement d'un laboratoire sur puce embarquant plusieurs réactions et analyses biologiques. Nous avons ainsi étudié différents aspects.

Le système microfluidique a été réalisé sur un substrat piézoélectrique de niobate de lithium de coupe $Y+128^\circ$ puisque d'une part, ce type de monocristal permet la génération et la propagation d'onde de Rayleigh sans pertes et d'autre part, le coefficient de couplage électromécanique selon la direction de propagation X est élevé. Des techniques classiques de microélectronique telles que la lithographie optique et la pulvérisation cathodique ont été utilisées pour fabriquer les transducteurs.

Pour une bonne observation des phénomènes d'échauffements et de mélange liés à l'interaction entre les ondes de Rayleigh et des microgouttes, un revêtement aux caractéristiques hydrophobes entre le substrat, aux propriétés intrinsèques hydrophiles, et les gouttes est nécessaire. Au cours de ces travaux, nous avons développé une couche hydrophobe dont la réalisation est simple. Après dissolution de granules de copolymère de P(VDF-TrFe) avec du butanone, la solution est étalée sur le substrat par spin-coating. L'optimisation des paramètres expérimentaux nous a conduit à obtenir une couche dont l'épaisseur est de 100nm et ne perturbe pas la propagation des ondes élastiques de surface. Elle permet, d'une part, de maintenir des gouttes pour étudier leur échauffement lorsque la surface est structurée en zone hydrophobe/hydrophile.

D'autre part, le projet de réalisation d'un laboratoire sur puce à base d'ondes élastiques de surface impose de contrôler le déplacement de gouttes. Nous avons montré que cette couche permet le déplacement de goutte avec des puissances injectées aux transducteurs comparables à celles avec d'autres types de revêtement, ce qui en fait un revêtement alternatif aux autres parfois compliqué à mettre en œuvre.

La PCR étant basé sur des cycles thermiques, nous nous sommes alors intéressés au phénomène d'échauffement de goutte par les ondes élastiques de surface. Plus précisément, l'étude était orientée suivant deux points cruciaux. Le premier portait sur l'uniformité de la température des gouttes, essentielle pour ce type de réaction, et le second concernait la minimisation de la puissance électrique du système. En effet, dans l'optique de l'intégrer sur un dispositif type μ TAS, il est important de penser dès maintenant à des systèmes consommant le moins d'énergie possible.

Il a été mis en évidence que l'uniformité se dégrade avec l'augmentation de la température de la goutte. Nous avons alors déterminé les meilleures conditions expérimentales pour obtenir une uniformité optimum. Nous retenons que le paramètre principalement influant est la fréquence des ondes élastiques et qu'elle doit être choisie la plus faible possible. Nous avons ensuite présenté un nouveau système d'échauffement à transducteur enterré sous une couche de dioxyde de silicium. Les gouttes sont ainsi placées directement sur le dispositif ce qui, comme nous l'avons montré, améliore l'uniformité de la température de la goutte et diminue les puissances électriques en jeu. Effectivement, l'échauffement du transducteur par effet Joule capté par la goutte et le mélange interne plus efficace en sont les principaux facteurs.

Rappelons tout de même qu'au-delà de la PCR, l'étude de l'échauffement et de l'uniformité de la température dans les gouttes peut servir dans d'autres réactions biologiques ou chimiques dont la cinétique dépend souvent de la température.

Pour finir, nous avons vérifié et validé la compatibilité des réactifs de la PCR avec les ondes élastiques de surface. Dans un premier temps, sachant que l'échauffement de gouttes par un dispositif à ondes élastiques de surface nécessite des liquides visqueux, nous avons montré l'avantage qu'apporte ce type de système par rapport à un thermocycleur classique à effet Peltier dans cette situation. L'échauffement étant principalement par conduction avec ce dernier, les réactifs sont figés par la viscosité du milieu et la PCR n'a plus lieu. La chaleur dans une goutte échauffée par un dispositif à ondes élastiques de surface se propage par convection forcée. La probabilité de rencontre des réactifs devrait ainsi augmenter et une PCR serait alors possible. Dans un second temps, des échantillons classiques de PCR ont été irradiés par des ondes élastiques avant d'effectuer une PCR par un thermocycleur standard à effet Peltier. La réussite de la réaction nous a aidé à conclure que les ondes élastiques de surface sont bien compatibles avec les réactifs de la PCR.

La suite du projet s'articule autour de différents points. Le premier, qui paraît évident, est la réalisation d'une première PCR en microgoutte échauffée par onde élastique de surface. Pour cela, une calibration infrarouge préalable des échantillons de PCR sera nécessaire pour déterminer leur émissivité. Les cycles thermiques et la stabilisation de la température pourront être automatisés par le logiciel LabView et un algorithme PID. La consigne contrôlera la puissance de sortie du générateur de signaux tandis que la mesure de température sera effectuée par la caméra thermique.

Le second point concerne la diminution des puissances électriques. La couche de dioxyde de silicium du dispositif à transducteur enterré peut être remplacée par un autre matériau tel que le nitrure d'aluminium (AlN) permettant l'amélioration du coefficient de couplage électromécanique. De cette manière, la puissance électrique nécessaire pour atteindre les mêmes températures sera ainsi réduite. Une première étape d'optimisation de la croissance de couche d'AlN sur niobate de lithium est nécessaire afin de déterminer les conditions expérimentales indispensables à l'obtention d'une couche d'AlN hexagonale orientée suivant l'axe cristallin (002).

Enfin, nous avons montré dans la conclusion du quatrième chapitre que la thermographie infrarouge est une technique intéressante pour évaluer l'efficacité de transducteurs. Dans le cas de substrat piézoélectrique à faible perte de propagation, l'observation infrarouge de deux gouttes placées de chaque côté du transducteur permet de déterminer qualitativement l'efficacité du transducteur. Avec des substrats à plus forte perte de propagation, il est possible d'imager directement le parcours de l'onde. En effet, le frottement entre les couches atomiques à la surface du substrat lors du passage de l'onde libère une partie de l'énergie qui chauffe la surface. La thermographie infrarouge est donc une méthode très avantageuse dans le sens où les mesures sont non destructrices et s'effectuent sans contacts. C'est une technique qui mérite d'être étudiée d'avantage car elle peut être utilisée pour comprendre et surtout améliorer le fonctionnement de dispositifs à ondes élastiques de surface.

Système microfluidique à onde élastique de surface : Vers la duplication d'ADN par PCR.

Dans ce travail, un système microfluidique à base d'ondes élastiques de surface a été développé dans le but de réaliser une réaction d'amplification de brins d'ADN par cycle de température (PCR). Nous avons principalement étudié la température et l'uniformité de l'échauffement des gouttes irradiées par des ondes de type Rayleigh. Ces dernières sont générées à la surface d'un substrat piézoélectrique de Niobate de Lithium (LiNbO_3). Nous avons pensé un système consommant le moins d'énergie électrique possible pour atteindre les températures désirées et permettant une meilleure uniformité de la température des gouttes. Pour cela, un dispositif à transducteur enterré a été réalisé sous une couche isolante de silice. Les gouttes sont ainsi directement posées sur le transducteur ce qui limite les pertes et améliore la répartition de la chaleur au sein des gouttes. Nous avons ensuite vérifié que les réactifs de la PCR ne sont pas affectés par les ondes de Rayleigh ce qui laisse présager que la PCR peut être réalisée à l'aide d'un système d'échauffement par ondes de Rayleigh. Par ailleurs, le déplacement de goutte sur ce type de substrat de LiNbO_3 est important pour des applications de type laboratoire sur puce. Ce substrat ayant des propriétés hydrophiles, des revêtements ont été développés afin de minimiser la force nécessaire à l'actionnement des gouttes. Dans ces travaux, nous proposons un nouveau type de couche à base de copolymère P(VDF-TrFe) dont la fabrication est simplement réalisée par dissolution et étalement par spin-coating. Nous avons montré que ce type de couche n'affecte que très peu la propagation des ondes de Rayleigh et les propriétés hydrophobes sont équivalentes à d'autres revêtements.

Mots clés : Dispositifs à ondes élastiques de surface, microfluidique digitale, onde de Rayleigh, thermographie infrarouge, laboratoire sur puce, interaction SAW/microgoutte, couche hydrophobe

Microfluidic system using surface acoustic wave: Toward the DNA amplification by PCR.

In this work, a microfluidic system based on surface acoustic wave has been developed in order to achieve the amplification of DNA strands by temperature cycling (PCR). We studied mainly the temperature and the heat uniformity of microdroplets irradiated by Rayleigh waves. These waves are generated at the surface of a lithium niobate substrate. We propose a system allowing better temperature uniformity within microdroplets with an optimal energy consumption. For this, a device with buried transducer has been developed under an insulating layer (Silice). The droplets are then placed directly on the transducer which limits losses and improves the distribution of heat within the microdroplets. We then verified that the PCR reagents are not affected by the Rayleigh waves which suggests that PCR can be performed using a heating system by Rayleigh waves. Moreover, the move of microdroplets on this kind of LiNbO_3 substrate is important for lab on chip applications. This substrate having hydrophilic properties, some coatings have been developed to minimize the required force to actuate the microdroplets. In this work, we developed a new hydrophobic layer based on copolymer P(VDF-TrFe) whose production is simply made by dissolving and spreading by spin-coating. We have shown that this kind of layer is compatible with Rayleigh waves and that the hydrophobic properties are equivalent to other coatings.

Keywords : Surface Acoustic Wave (SAW) device, digital microfluidic, Rayleigh wave, Infrared thermography, lab on a chip, SAW/microdroplet interaction, hydrophobic layer