

SPIM

Thèse de Doctorat



école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**  
UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ

## Microfluidique diphasique accordable

■ Nathalie Tarchichi



# SPIM

## Thèse de Doctorat



école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**  
UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ

THÈSE présentée par

Nathalie TARCHICHI

pour obtenir le

Grade de Docteur de  
l'Université de Franche-Comté

Spécialité : **Sciences pour l'Ingénieur**

### Microfluidique diphasique accordable

Soutenue le 18 Avril 2013 devant le Jury :

|                        |                       |   |
|------------------------|-----------------------|---|
| Claudine FILIATRE      | Présidente            | Professeur à l'Université de Franche-Comté            |
| Benoit SCHEID          | Rapporteur            | Professeur à l'Université libre de Bruxelles          |
| Marie-Caroline JULLIEN | Rapporteur            | Chargée de recherche CNRS à l'ESPCI ParisTech         |
| Philippe MARMOTTANT    | Examineur             | Chargé de recherche CNRS à l'Université de Grenoble 1 |
| Franck CHOLLET         | Directeur de thèse    | Professeur à l'Université de Franche-Comté            |
| Jean-François MANCEAU  | Co-directeur de thèse | Professeur à l'Université de Franche-Comté            |



# SOMMAIRE

|  |           |
|--|-----------|
| Remerciements  | 11        |
| Introduction générale  | 13        |
| <b>1 La microfluidique diphasique</b>  | <b>15</b> |
| 1.1 Introduction . . . . .   | 15        |
| 1.2 Notions microfluidiques générales . . . . .  | 15        |
| 1.2.1 Liquide newtonien . . . . .  | 15        |
| 1.2.2 Écoulement laminaire dans les microcanaux fluidiques . . . . .                       | 15        |
| 1.2.3 Perte de charge dans les microcanaux fluidiques . . . . .                            | 17        |
| 1.3 Microfluidique diphasique . . . . .  | 18        |
| 1.3.1 Introduction . . . . .   | 18        |
| 1.3.2 Forces en jeu . . . . .  | 18        |
| 1.3.3 Écoulements microfluidiques diphasiques . . . . .                                    | 18        |
| 1.4 Génération de gouttelettes et de bulles dans des microsystèmes fluidiques .            | 19        |
| 1.4.1 Types de générateur . . . . .  | 20        |
| 1.4.1.1 Co-Flowing . . . . .   | 20        |
| 1.4.1.2 Flow-Focusing . . . . .  | 20        |
| 1.4.1.3 T-Jonction ou Y-Jonction . . . . .   | 20        |
| 1.4.2 Taille des gouttelettes ou des bulles . . . . .                                      | 22        |
| 1.4.2.1 Exemples de tailles obtenues dans la littérature . . . . .                         | 22        |
| 1.4.2.2 Modélisation de la taille de gouttelettes générées dans la jonction en T . . . . . | 23        |
| 1.4.2.3 Conclusion . . . . .   | 26        |
| 1.4.3 Régimes de génération dans une jonction en T . . . . .                               | 26        |
| 1.4.3.1 Régime "squeezing" . . . . .   | 26        |
| 1.4.3.2 Régime "dripping" . . . . .  | 27        |
| 1.4.3.3 Régime "jetting" . . . . .   | 27        |
| 1.4.3.4 Conclusion . . . . .   | 28        |
| 1.4.4 Paramètres contrôlant la génération . . . . .  | 29        |

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| 1.4.4.1  | Viscosité . . . . .   | 29        |
| 1.4.4.2  | Tension de surface ou tension interfaciale . . . . .                    | 29        |
| 1.4.4.3  | Mouillabilité . . . . .   | 30        |
| 1.4.4.4  | Débits des deux phases . . . . .  | 30        |
| 1.4.4.5  | Géométrie des microcanaux . . . . .                                     | 31        |
| 1.5      | Fabrication des microcanaux . . . . .                                   | 31        |
| 1.5.1    | Technologie PDMS . . . . .  | 32        |
| 1.5.2    | Technologie verre . . . . .   | 33        |
| 1.5.3    | Technologie silicium . . . . .  | 33        |
| 1.5.3.1  | Photolithographie . . . . .   | 33        |
| 1.5.3.2  | Gravure . . . . .   | 35        |
| 1.5.3.3  | soudure anodique . . . . .  | 38        |
| 1.6      | Conclusion . . . . .  | 41        |
| <b>2</b> | <b>Dispositifs microfluidiques pour la génération de gouttelettes</b>   | <b>43</b> |
| 2.1      | Introduction . . . . .  | 43        |
| 2.2      | Fluides . . . . .   | 43        |
| 2.3      | Mesure de la tension de surface et de la tension interfaciale . . . . . | 44        |
| 2.3.1    | Principe de mesure . . . . .  | 44        |
| 2.3.2    | Méthodes de mesure . . . . .  | 44        |
| 2.3.2.1  | Méthode de l'anneau . . . . .   | 44        |
| 2.3.2.2  | Méthode de la lame . . . . .  | 45        |
| 2.3.3    | Expériences . . . . .   | 45        |
| 2.3.4    | Tension interfaciale élevée . . . . .                                   | 45        |
| 2.4      | Canaux microfluidiques en T-jonction . . . . .                          | 46        |
| 2.5      | Dispositifs microfluidiques intégrés sur silicium . . . . .             | 46        |
| 2.5.1    | Photolithographie face avant . . . . .                                  | 49        |
| 2.5.2    | Gravure face avant . . . . .  | 49        |
| 2.5.3    | Photolithographie face arrière . . . . .                                | 54        |
| 2.5.4    | Gravure face arrière . . . . .  | 55        |
| 2.5.5    | Soudure anodique . . . . .  | 55        |
| 2.5.6    | Découpe à la scie . . . . .   | 56        |
| 2.5.7    | Connectique . . . . .   | 58        |
| 2.5.8    | Banc de caractérisation . . . . .                                       | 58        |
| 2.5.9    | Résultats expérimentaux . . . . .                                       | 60        |

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| 2.6      | Dispositifs à faible perte de charge . . . . .                                   | 62        |
| 2.6.1    | Photolithographie du dispositif entier . . . . .                                 | 62        |
| 2.6.2    | Ouverture BHF . . . . .  | 65        |
| 2.6.3    | Photolithographie des parties profondes . . . . .                                | 65        |
| 2.6.4    | Gravure DRIE . . . . .   | 65        |
| 2.6.5    | Soudure anodique . . . . .   | 65        |
| 2.6.6    | Connectique . . . . .  | 66        |
| 2.6.7    | Conclusion . . . . .   | 66        |
| 2.7      | Dispositifs intégrés sur PDMS . . . . .  | 66        |
| 2.7.1    | Photolithographie . . . . .  | 67        |
| 2.7.2    | Gravure . . . . .  | 68        |
| 2.7.3    | Réalisation du PDMS . . . . .  | 68        |
| 2.7.4    | Connectique . . . . .  | 68        |
| 2.8      | Conclusion . . . . .   | 70        |
| <b>3</b> | <b>Génération de gouttelettes en régime dripping</b>                             | <b>71</b> |
| 3.1      | Introduction . . . . .   | 71        |
| 3.2      | Régimes de génération de gouttelettes dans une T-jonction . . . . .              | 71        |
| 3.3      | Forme 3D de la gouttelette . . . . .   | 72        |
| 3.4      | Répétabilité . . . . .   | 74        |
| 3.5      | Monodispersité . . . . .   | 75        |
| 3.6      | Mécanisme et modèle de formation des gouttelettes en régime dripping . . .       | 75        |
| 3.7      | Expression de la perte de charge dans un étranglement de microcanal . . .        | 80        |
| 3.8      | Génération accordable de gouttelettes en régime dripping . . . . .               | 83        |
| 3.8.1    | Introduction . . . . .   | 83        |
| 3.8.2    | Largeur du microcanal de la phase dispersée . . . . .                            | 84        |
| 3.8.3    | Largeur du microcanal de la phase continue . . . . .                             | 88        |
| 3.8.4    | Profondeur des microcanaux . . . . .   | 91        |
| 3.8.5    | Vitesse de la phase continue . . . . .   | 91        |
| 3.8.6    | Vitesse de la phase dispersée . . . . .  | 91        |
| 3.8.7    | Conclusion . . . . .   | 94        |
| 3.9      | Dispositifs à faible perte de charge pour de gouttelettes de petite taille . . . | 95        |
| 3.9.1    | Introduction . . . . .   | 95        |
| 3.9.2    | Tailles de gouttelettes . . . . .  | 96        |
| 3.9.3    | Arrangement de gouttelettes . . . . .  | 97        |

|  |            |
|--|------------|
| 3.10 Conclusion . . . . .  | 97         |
| <b>4 Génération de gouttelettes en régime balloon</b>  | <b>101</b> |
| 4.1 Introduction . . . . .   | 101        |
| 4.2 Conditions expérimentales . . . . .  | 101        |
| 4.3 Mécanisme de formation des gouttelettes en régime balloon . . . . .  | 102        |
| 4.4 Effet de la géométrie du dispositif microfluidique sur la génération de gouttelettes en régime balloon . . . . . | 105        |
| 4.4.1 Largeur du microcanal de la phase dispersée . . . . .  | 105        |
| 4.4.2 Largeur du microcanal de la phase continue . . . . .   | 105        |
| 4.4.3 Profondeur des microcanaux . . . . .   | 106        |
| 4.5 Effet des caractéristiques des écoulements sur la génération de gouttelettes en régime balloon . . . . .         | 107        |
| 4.5.1 Vitesse de la phase dispersée . . . . .  | 107        |
| 4.5.2 Vitesse de la phase continue . . . . .   | 108        |
| 4.5.3 Tension interfaciale . . . . .   | 109        |
| 4.5.4 Viscosité . . . . .  | 111        |
| 4.6 Conclusion . . . . .   | 113        |
| <b>5 Dispositifs microfluidiques accordables</b>   | <b>115</b> |
| 5.1 Introduction . . . . .   | 115        |
| 5.2 Microbulles pour la photonique . . . . .   | 115        |
| 5.2.1 Choix des bulles . . . . .   | 116        |
| 5.2.2 Dispositif microfluidique . . . . .  | 116        |
| 5.2.3 Génération de bulles . . . . .   | 119        |
| 5.2.4 Stabilisation de bulles . . . . .  | 119        |
| 5.2.5 Arrangement de bulles . . . . .  | 121        |
| 5.2.6 Interaction bulles/onde optique . . . . .  | 122        |
| 5.3 Microbulles pour l'acoustique . . . . .  | 125        |
| 5.3.1 Choix des bulles . . . . .   | 125        |
| 5.3.2 Interaction bulles/ondes acoustiques . . . . .   | 125        |
| 5.4 Conclusion . . . . .   | 128        |
| <b>Conclusion générale</b>   | <b>131</b> |
| <b>Perspectives</b>  | <b>133</b> |
| <b>Bibliographie</b>   | <b>135</b> |



|                                      |            |
|--------------------------------------|------------|
| <b>A Pousse-seringue</b>             | <b>141</b> |
| <b>B Analyse d'image avec ImageJ</b> | <b>143</b> |



# REMERCIEMENTS

Ce manuscrit est le fruit de trois ans de travail effectué au laboratoire FEMTO-ST de l'Université de Franche-Comté, au sein du département MN2S (micro nano sciences et systèmes) à Besançon.

Je remercie tout d'abord M. Frédéric CHERIOUX, directeur du département MN2S, pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire.

Je présente mes remerciements aux membres du jury pour m'avoir fait l'honneur de juger ce travail de thèse et pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail : Mme Claudine Filiatre, présidente, M. Benoit Scheid et Mme Marie-Caroline Jullien, rapporteurs, et M. Philippe Marmottant, examinateur.

Je tiens à exprimer ma gratitude envers toutes les personnes qui m'ont rassuré et encouragé dans mes choix et qui ont fait ainsi de ces trois années une expérience formidablement enrichissante.

En premier lieu, je remercie mon directeur de thèse M. Franck CHOLLET, Professeur à l'Université de Franche-Comté, qui m'a encadré pendant ces trois années. Vous étiez une personne formidable, très attentive, pleine d'idées et toujours à l'écoute. Je vous remercie pour la qualité de votre encadrement, pour vos conseils, votre soutien et votre confiance. Bref, je vous remercie pour le bon déroulement de cette thèse.

Je tiens également à remercier mon co-directeur de thèse M. Jean-François MANCEAU, Professeur à l'Université de Franche-Comté, pour ses conseils.

Je remercie très sincèrement M. Abdelkrim KHELIF, Professeur à l'Université de Franche-Comté pour le temps qu'il m'a consacré pour m'expliquer les résultats de l'interaction entre les bulles et l'onde acoustique, ainsi que Mme Claudine FILIATRE, Professeur à l'Université de Franche-Comté, pour avoir partagé avec moi sa connaissance des interfaces.

J'adresse des chaleureux remerciements à Mme Valérie PETRINI, technicienne attachée à la salle blanche MIMENTO de FEMTO-ST et à M. Rabah ZEGGARI, post-doctorant à FEMTO-ST, pour leur aide lors de la fabrication des dispositifs microfluidiques. Je n'oublie jamais les discussions, autour d'une tasse de thé, à propos de la microfabrication et la salle blanche.

Je remercie également Khaled METWALLY, doctorant à FEMTO-ST, pour son aide lors de la fabrication du moule de PDMS, Aliyasin EL AYOUCHE, doctorant à FEMTO-ST, pour son aide lors de la réalisation des expériences en acoustique, ainsi que Mme Murielle AMIOT, assistante ingénieur à l'ENSMM, pour son aide lors de la mesure de la tension interfaciale.

J'adresse, pareillement, mes remerciements à tous les membres du laboratoire, anciens et présents, pour leur bonne humeur. Merci pour les beaux moments partagés ensemble dans la salle de convivialité. Merci donc à Rabah, Khaled, Alexia, Sarah, Valérie, Jérôme, Akanksha, Fabien-Rémy, Alex...

Ma reconnaissance et mon affection vont à mes adorables parents pour leur soutien, leur présence et leur encouragement jusqu'au jour de la soutenance. Je les remercie pour l'éducation que j'ai reçue de leur part, et sans laquelle je n'aurais pu accomplir tout le chemin qui m'a mené jusqu'à la thèse.

Je remercie également mon frère, mes beaux parents et toute ma famille pour leur encouragement durant ces trois années de thèse.

Enfin, je remercie mon cher mari Yehya Mohsen du fond du coeur de m'avoir transmis cette force spéciale me permettant de débiter chaque nouvelle journée avec sérénité. Merci pour ton soutien, ton amour et ton encouragement durant ces trois années de thèse. Je ne sais pas si j'y serais arrivée sans toi.

# INTRODUCTION GÉNÉRALE

La microfluidique est définie comme étant la science qui étudie le comportement des fluides dans des canaux dont l'une des dimensions est micrométrique [1]. Une branche de la microfluidique est la microfluidique diphasique qui étudie le comportement de deux fluides non miscibles. La génération de bulles ou de gouttelettes constitue un domaine attractif pour plusieurs applications, ainsi on trouve des gouttelettes dans la formulation d'une large gamme de produits tels que les aliments [2], les cosmétiques [3] et les produits pharmaceutiques [4], etc.

En plus de ces nombreuses applications dans les secteurs industriels, la microfluidique s'étale sur différents domaines de la recherche, à noter : la biologie [5], la chimie [6], l'acoustique [7], la photonique [8], etc.

L'émergence des nouveaux champs de la micro-opto-fluidique [9, 10] ou de la micro-acousto-fluidique [11] au début du vingt-et-unième siècle a montré que ces domaines disjoints (la fluidique d'une part et la photonique/acoustique d'autre part) pourraient bénéficier les uns des autres. En effet, les gouttelettes/bulles résultantes de la rencontre entre deux fluides immiscibles ont de nombreuses caractéristiques qui les rendent très intéressantes pour ces types d'applications.

D'abord, les interfaces lisses obtenues lorsque deux fluides sont en contact évitent les problèmes de diffusion de la lumière/ou du son souvent rencontrés avec les systèmes solides, permettant ainsi de créer des structures à faible pertes. Ensuite, la dynamique de ces systèmes microfluidiques assure une accordabilité aisée en remplaçant facilement des gouttelettes/bulles par d'autres (changement de la taille, de la nature des fluides..).

Par exemple, le changement de la taille des gouttelettes/bulles peut conduire à un changement de la fréquence de résonance du système, tout en conservant le même dispositif microfluidique sans changer ni la géométrie ni la nature des matériaux utilisés.

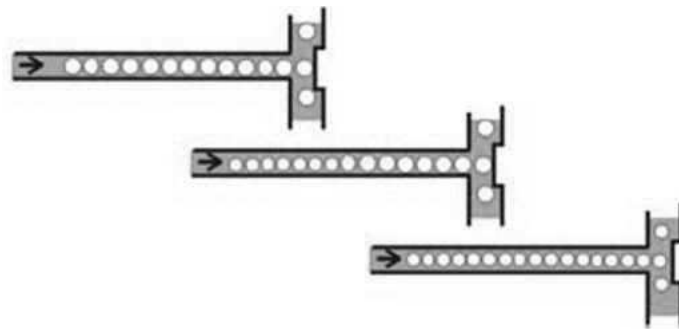


FIGURE 1 – Accordabilité des systèmes microfluidiques : remplacement des bulles par d'autres bulles de taille différente pouvant constituer un réseau de diffraction de pas variable.

C'est dans ce contexte qu'est né le projet de cette thèse où l'idée de base est de générer des gouttelettes/bulles monodispersées de taille contrôlable pour produire des structures accordables.

Ainsi, nous avons besoin de la microfluidique [1, 12] qui, contrairement aux techniques traditionnelles (agitation à grande vitesse ou par ultrasons), a ouvert de nouvelles possibilités pour produire des gouttelettes/bulles monodispersées en utilisant des géométries des microcanaux particulières comme la jonction en T.

Afin de contrôler la forme et la taille des gouttelettes/bulles générées, il est essentiel d'étudier en détail leurs mécanismes de formation, ainsi que les paramètres qui influent sur cette génération, tout particulièrement au niveau des géométries des microcanaux, des écoulements et des matériaux utilisés.

Notre étude devra donc explorer chacun de ces points avant de pouvoir appliquer concrètement la microfluidique pour réaliser des dispositifs accordables.

Le présent manuscrit est ainsi composé de cinq chapitres. Dans le premier chapitre, nous présentons l'état de l'art sur les outils microfluidiques utilisés pour générer des gouttelettes ou des bulles. Nous parlons tout d'abord des différents types d'écoulements diphasiques observés dans des canaux microfluidiques et plus précisément la génération de gouttelettes/bulles. Puis nous discutons le choix de la géométrie de la jonction en T parmi les autres géométries présentes dans la littérature, et les régimes de génération de gouttelettes/bulles observés dans cette configuration. Ensuite nous présentons les paramètres qui influent sur la formation et la taille de ces gouttelettes/bulles. Enfin, nous abordons la préparation des dispositifs microfluidiques et les différents matériaux utilisés.

Le deuxième chapitre décrit les différents outils expérimentaux utilisés dans cette thèse incluant les méthodes de préparation de nos propres dispositifs microfluidiques depuis les microcanaux jusqu'à la connectique fluide. Ainsi nous allons présenter la fabrication des dispositifs microfluidiques intégrés sur silicium et ceux intégrés sur PDMS.

Le troisième et le quatrième chapitres abordent la génération de gouttelettes dans la configuration de jonction en T. Plus particulièrement, nous présentons le régime dripping dans le troisième chapitre et le régime balloon dans le quatrième chapitre. Il faut noter que le régime balloon est un nouveau régime de génération de gouttelettes décrit pour la première fois dans le cadre de cette thèse. Nous présentons des mécanismes de formation de gouttelettes dans les deux régimes, et nous discutons certains paramètres qui peuvent contrôler la taille de ces gouttelettes comme la géométrie des microcanaux de la jonction en T et les vitesses des phases continue et dispersée. Enfin, une comparaison entre ces deux régimes est présentée.

Le chapitre final est consacré à la présentation d'applications des dispositifs étudiés précédemment, démontrant l'accordabilité des systèmes microfluidiques dans les domaines acoustique et photonique.

# LA MICROFLUIDIQUE DIPHASIQUE

## 1.1/ INTRODUCTION

Les systèmes microfluidiques encore peu évolués en 1990, ont connu depuis une évolution très rapide. Gravesen et al. en 1993 [13], Shoji et Esashi en 1994 [14], ont publié deux articles de synthèse non seulement sur les composants microfluidiques de base (micro-pompe, micro-valve, micro-débitmètres...), mais aussi sur les systèmes microfluidiques complexes comme les systèmes d'analyses chimiques et les systèmes mécaniques de dosage. Et depuis les systèmes microfluidiques ne cessent pas d'évoluer, couvrant des larges domaines en sciences et en technologies. Parmi les nombreuses applications des systèmes microfluidiques en chimie, en biologie et en photonique, beaucoup sont basées sur la dispersion d'une phase fluide dans une autre phase fluide immiscible (génération de bulles d'air dans un liquide ou de gouttelettes d'huile dans l'eau) [15].

Avant de détailler les méthodes de génération de gouttelettes ou de bulles et les paramètres qui la contrôlent, il nous semble important de rappeler quelques notions fondamentales de la microfluidique.

## 1.2/ NOTIONS MICROFLUIDIQUES GÉNÉRALES

### 1.2.1/ LIQUIDE NEWTONIEN

La viscosité est définie comme étant la résistance à l'écoulement uniforme et sans turbulence qui se produit dans la masse d'une matière. Ainsi pour un fluide s'écoulant sur une paroi fixe, la contrainte de cisaillement  $\tau$ , entre les couches est proportionnelle au gradient de vitesse  $\frac{\partial v}{\partial y}$  dans la direction perpendiculaire aux couches :

$$\tau = \mu \left( \frac{\partial v}{\partial y} \right) \quad (1.1)$$

avec  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide. Ce cas est bien vérifié pour les liquides newtoniens (comme par exemple l'eau) où la viscosité (pour une température constante) ne varie pas avec la contrainte appliquée.

### 1.2.2/ ÉCOULEMENT LAMINAIRE DANS LES MICROCANAUX FLUIDIQUES

Le passage de l'échelle macrométrique à l'échelle micrométrique n'entraîne pas l'apparition des interactions physiques nouvelles mais un changement d'équilibre entre ces différentes

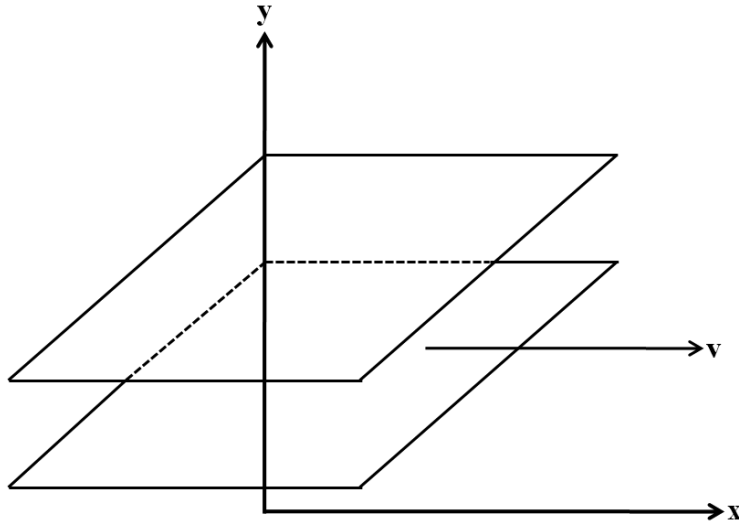


FIGURE 1.1 – Viscosité d'un fluide.

interactions. Ainsi des nombres non dimensionnels ont été utilisés pour évaluer la contribution relative des forces dans les écoulements microfluidiques.

En absence des forces extérieures, l'écoulement d'un fluide newtonien dans une conduite est décrit par l'équation de Navier-stokes :

$$\rho \left( \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \vec{v} \right) = -\overrightarrow{\text{grad}} p + \mu \Delta v \quad (1.2)$$

La nature des écoulements est régie par l'importance relative du terme convectif non linéaire  $((\vec{v} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}) \vec{v})$ . En fait, celle-ci est classiquement déterminée par le nombre de Reynolds  $Re$  qui compare la force d'inertie et les forces visqueuses.

$$Re = \frac{\rho v D_h}{\mu} \quad (1.3)$$

avec  $\rho$  la masse volumique du fluide en  $\text{kg}/\text{m}^3$ ,  $v$  la vitesse du fluide en  $\text{m}/\text{s}$ ,  $D_h$  le diamètre hydraulique du canal en  $\text{m}$ .

A l'échelle macrométrique, et selon le rapport entre ces deux forces, les écoulements fluidiques peuvent être laminaires ou turbulents. Cependant, à l'échelle micrométrique, le nombre de Reynolds est généralement largement inférieur à 1 (typiquement entre  $10^{-3}$  et  $10^{-2}$ ). L'hydrodynamique est donc dominée par les effets visqueux et le fluide est en écoulement laminaire. Ce dernier est décrit dans le cas stationnaire par l'équation de Stokes :

$$\overrightarrow{\text{grad}} p = \mu \Delta v \quad (1.4)$$

Dans ce cas, il n'y a pas de turbulence ou de zone de re-circulation. Les lignes d'écoulement sont régulières et complètement prédictibles, ce qui conduit à des écoulements reproductibles sans fluctuations [16].

L'écoulement laminaire d'un fluide incompressible entre deux plans parallèles sous l'effet d'un gradient de pression uniforme correspond à un écoulement de Poiseuille. Pour un canal bidimensionnel, la résolution de l'équation de Stokes montre que la vitesse d'écoulement a un profil parabolique comme le montre la figure 1.2.



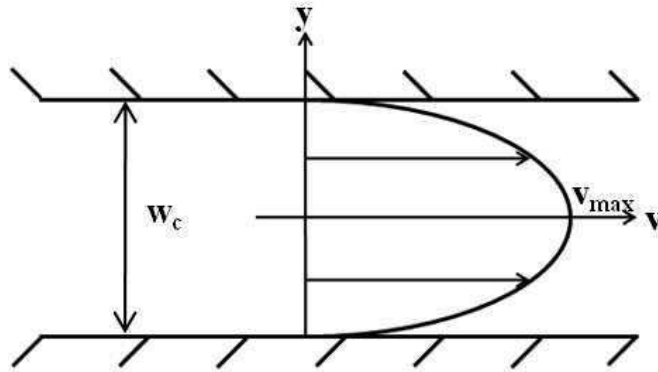


FIGURE 1.2 – Profil parabolique de la vitesse.

### 1.2.3/ PERTE DE CHARGE DANS LES MICROCANAUx FLUIDIQUES

L'écoulement d'un fluide dans un microcanal dépend essentiellement de la taille de ce dernier. Plus cette taille est petite, plus l'écoulement du fluide est difficile. Par analogie au courant électrique, on a défini le paramètre traduisant la résistance à l'écoulement de fluide dans les microcanaux qui est  $R_h$  [17].

Ainsi, la perte de charge  $\Delta P$  dans un canal est définie comme étant le produit de la résistance hydraulique et le débit d'écoulement :

$$\Delta P = R_h Q = R_h v S \quad (1.5)$$

avec  $v$  la vitesse moyenne du fluide et  $S$  la section du microcanal.

En se basant sur l'équation de Stokes, la perte de charge dans un canal circulaire s'écrit :

$$\Delta P = \frac{R_e f \mu L}{2D_h^2} v \quad (1.6)$$

avec  $L$  la longueur du microcanal et  $f$  le coefficient de perte de charge de Darcy.

Il faut noter que la perte de charge générale dépend des paramètres suivants :

- La longueur de la canalisation : plus le microcanal est long, plus la perte de charge est importante.
- Le diamètre hydraulique qui est par définition exprimé par l'équation 1.7 :

$$D_h = \frac{4A}{P} \quad (1.7)$$

avec  $A$  l'aire de la section de passage de la conduite et  $P$  le périmètre de la conduite en contact avec le liquide. Pour un canal circulaire  $D_h = 2R$  où  $R$  est le rayon du canal.

plus le diamètre hydraulique du microcanal est petit, plus la perte de charge est importante. En fait, pour un débit identique, les forces de frottement sont plus importantes et le liquide a plus de difficulté à s'écouler dans le microcanal.

- La vitesse : pour un diamètre identique, plus la vitesse d'écoulement du fluide est importante, plus les forces de frottement sont importantes.

En microfluidique, vu les dimensions des microcanaux mis en jeu (quelques micromètres à quelques centaines de micromètres), la perte de charge est généralement importante. Ainsi, pour faciliter l'écoulement des fluides dans les microcanaux, il faut bien contrôler les paramètres cités ci-avant.

## 1.3/ MICROFLUIDIQUE DIPHASIQUE

### 1.3.1/ INTRODUCTION

La microfluidique diphasique étudie le comportement de deux fluides non miscibles, et plus précisément la dispersion d'une phase dans une autre phase non miscible. Ainsi, on appelle phase dispersée et phase continue, respectivement, les gouttes/bulles et le liquide transporteur qui les porte. En milieu confiné, les conditions de mouillage des parois déterminent le caractère continu et dispersé des phases.

### 1.3.2/ FORCES EN JEU

A l'interface entre la phase dispersée et la phase continue, plusieurs forces interviennent dont la force capillaire et la force visqueuse.

- Force capillaire : elle s'applique sur le contour délimitant une surface  $s$  ayant une courbure moyenne  $\kappa$  :

$$F_{\text{capillaire}} \approx \sigma \kappa s \quad (1.8)$$

avec  $\sigma$  tension de surface en N/m.

- Force visqueuse : elle s'exerce sur la surface  $s$

$$F_{\text{visqueuse}} \approx \tau s \quad (1.9)$$

Le rapport entre ces deux forces définit le nombre capillaire  $Ca$  :

$$Ca = \frac{F_{\text{visqueuse}}}{F_{\text{capillaire}}} \propto \frac{\mu v}{\sigma} \quad (1.10)$$

D'une façon générale, en microfluidique, le nombre capillaire varie entre  $10^{-4}$  et 10. Cela traduit la possibilité de domination d'une force sur l'autre. Par exemple, à faible nombre capillaire, on verra que la force capillaire maintient la gouttelette en place et s'oppose à son détachement.

### 1.3.3/ ÉCOULEMENTS MICROFLUIDIQUES DIPHASIQUES

En 1980, Hestroni a décrit le comportement des systèmes diphasiques à l'échelle macroscopique [18]. La rencontre de deux fluides immiscibles (deux liquides immiscibles comme l'eau et l'huile, ou un liquide et un gaz comme l'eau et l'air), entraînent l'apparition des comportements complexes.

A l'échelle micrométrique, les phénomènes sont très différents, et la génération de formes régulières est possible en contrôlant certains paramètres.

Lors de l'introduction de deux phases immiscibles dans un microcanal, trois types d'écoulement stable peuvent apparaître :

- Écoulement à gouttelettes ou à bulles : dans un système microfluidique, un fluide (phase dispersée), forme des gouttelettes ou des bulles à l'intérieur d'un deuxième fluide immiscible (phase continue). Les gouttelettes ou les bulles microfluidiques formées peuvent présenter deux formes : une forme sphérique (figure 1.3 a), si leur taille est inférieure à la dimension du microcanal ou une forme allongée (slugs) (figure 1.3 b), si leur longueur est supérieure à la dimension du microcanal [19].

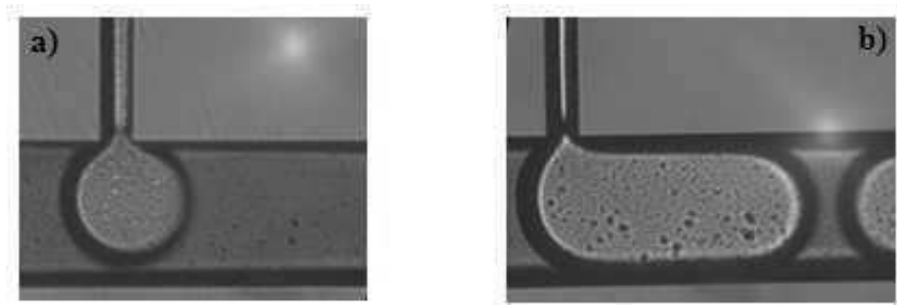


FIGURE 1.3 – Génération de gouttelettes d’huile dans l’eau : gouttelettes sphériques (a) et gouttelettes allongées (b).

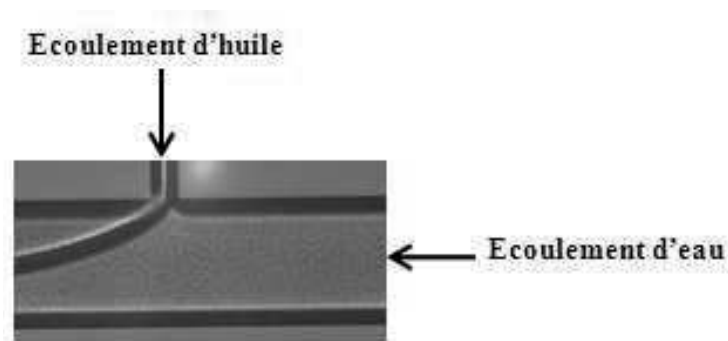


FIGURE 1.4 – Écoulement stratifié : l’eau et l’huile s’écoulent parallèlement l’un à l’autre.

- Écoulement stratifié (figure 1.4) : les deux fluides s’écoulent parallèlement l’un à l’autre dans le microcanal fluide [19, 20].
- Écoulement annulaire : un fluide s’écoule au milieu du microcanal et le deuxième s’écoule à proximité des parois [21].

Dans ce qui se suit, nous allons détailler la génération de gouttelettes et de bulles, puisque c’est le type d’écoulement qui nous intéresse dans le cadre de cette thèse.

#### 1.4/ GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES ET DE BULLES DANS DES MICROSYSTÈMES FLUIDIQUES

La microfluidique des gouttelettes ou des bulles, aussi appelée microfluidique digitale, introduite par Paik et al. en 2003 [22], concerne la génération et la manipulation de gouttelettes ou de bulles dans des microcanaux.

Les gouttelettes ou les bulles peuvent être générées de façon passive ou active :

- Méthode passive : la formation des gouttelettes ou des bulles est obtenue par des forces naturelles qui apparaissent lors de l’écoulement.
- Méthode active : des forces extérieures (en plus de celles utilisées pour induire l’écoulement) sont fournies pour former ces gouttelettes ou ces bulles [23].

Étant donné que les méthodes actives sont beaucoup plus complexes à mettre en oeuvre, nous avons préféré l’utilisation de méthodes passives. L’application de ces dernières méthodes exigent l’utilisation des géométries des canaux bien particulières comme la jonction en T, le flow-focusing et le co-flowing.

Ces configurations permettent la génération de gouttelettes/bulles monodispersées, ainsi que le contrôle de leur taille et de leur forme.

Dans les paragraphes suivants, nous présentons les géométries utilisées pour générer ces gouttelettes/bulles, les régimes de génération de ces gouttelettes/bulles, ainsi que les paramètres qui contrôlent cette génération.

#### 1.4.1/ TYPES DE GÉNÉRATEUR

Pour générer des gouttelettes ou des bulles monodispersées, plusieurs systèmes basés sur différents types de jonction ont été mis en oeuvre depuis ces dernières années, parmi ces techniques, on peut citer :

##### 1.4.1.1/ CO-FLOWING

Cette méthode de génération de gouttelettes basée sur le principe des microcanaux concentriques a été mise en oeuvre pour la première fois par Umbanhowar et al. en 2000 [24].

Elle consiste à injecter la phase dispersée dans un microcanal central placé au milieu d'un autre microcanal de dimension plus grande. La phase dispersée se déstabilise et se brise en gouttelettes par instabilité de Rayleigh-Plateau, et la formation de la gouttelette est dépendante du diamètre du microcanal contenant la phase dispersée [25, 26, 27, 28] (figure 1.5).

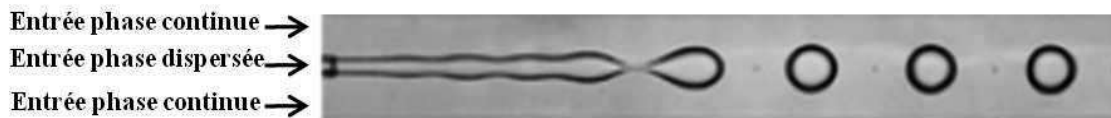


FIGURE 1.5 – Schéma représentatif de la co-flowing [25].

##### 1.4.1.2/ FLOW-FOCUSING

La phase continue est introduite dans deux canaux latéraux et la phase dispersée est injectée dans un canal central. L'ensemble de ces trois courants est dirigé vers un rétrécissement permettant ainsi la génération de gouttelettes ou de bulles [29, 30, 31, 32, 33]. Les premiers systèmes de flow-focusing microfabriqués sont apparus en 2001 pour générer des gouttelettes d'eau dans l'huile [34] (figure 1.6). En effet, la phase continue exerce une pression capable de forcer la phase dispersée à se diriger vers le rétrécissement et ainsi se briser en gouttelettes [29].

##### 1.4.1.3/ T-JONCTION OU Y-JONCTION

Dans cette configuration, la phase continue est introduite dans le canal principal et la phase dispersée est amenée perpendiculairement par un canal secondaire. Les deux phases forment une interface à la jonction, et la phase dispersée, envahissant le canal principal, finit par se détacher [35, 36].

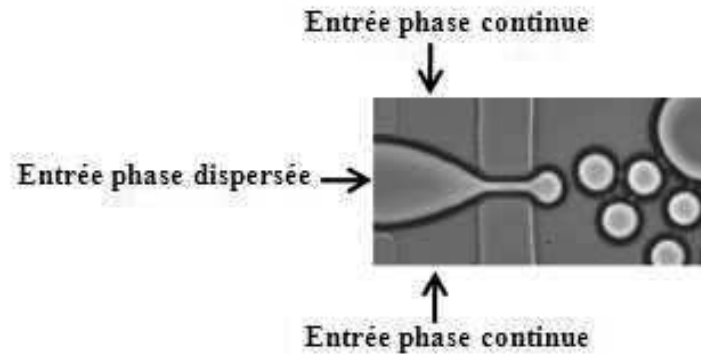


FIGURE 1.6 – Schéma représentatif de la flow-focusing [29].

La jonction en T est la technique la plus simple et une des plus utilisées en microsystème fluide pour la génération de gouttelettes ou de bulles dans des microcanaux de manière contrôlée [37, 38] (figure 1.7).

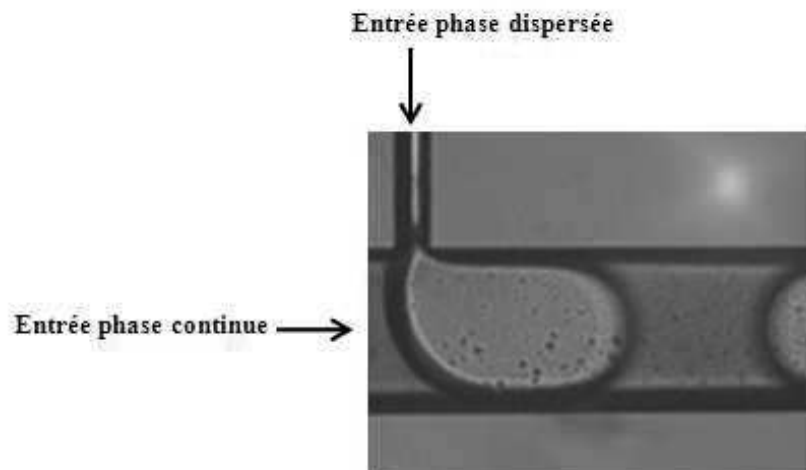


FIGURE 1.7 – Génération de gouttelettes d'huile dans l'eau dans une jonction en T.

Une variante de la jonction en T est la jonction en Y (figure 1.8), qui possède un angle d'intersection entre le canal principal et le canal secondaire différent de  $90^\circ$  [39, 40]. En comparaison avec les microcanaux en T-jonction, le flow-focusing génère habituellement des gouttelettes sphériques plutôt que des gouttelettes allongées, en raison de l'isolement de la phase dispersée dans la région centrale du canal principal [41].

Bien que la géométrie du flow-focusing favorise l'obtention des gouttelettes/bulles de petites tailles, nous avons choisi d'utiliser la géométrie en T-jonction puisque c'est la géométrie la plus simple à mettre en oeuvre et où l'évolution de la taille des gouttelettes/bulles est directement liée aux dimensions des microcanaux. En plus, en contrôlant les autres paramètres (autre que la géométrie (voir 1.4.4)), la génération de gouttelettes/bulles de très petites tailles en utilisant la géométrie de la jonction en T est tout à fait réalisable (discussion dans le paragraphe suivant).

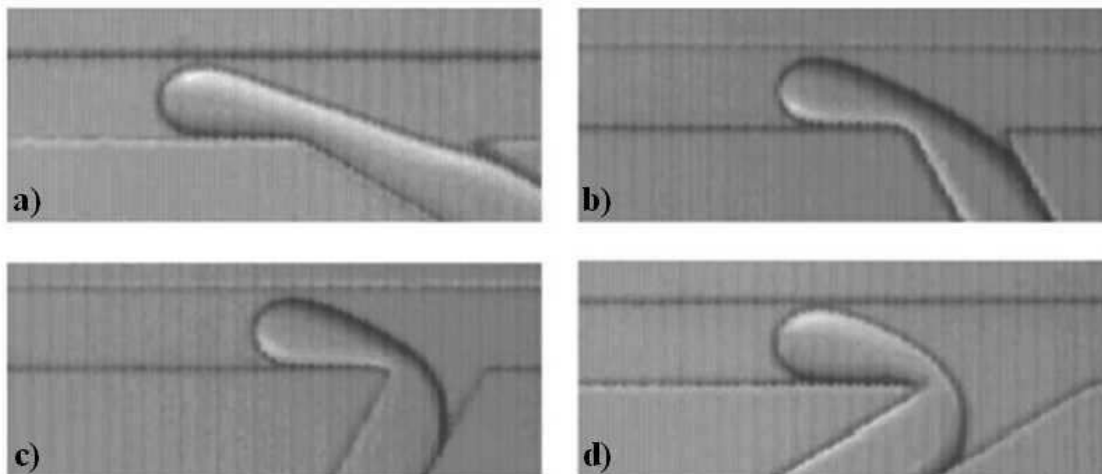


FIGURE 1.8 – Schéma représentatif de la jonction en Y avec  $\theta = 30^\circ$ (a),  $\theta = 60^\circ$ (b),  $\theta = 120^\circ$ (c) et  $\theta = 150^\circ$ (d) [40].

#### 1.4.2/ TAILLE DES GOUTTELETTES OU DES BULLES

##### 1.4.2.1/ EXEMPLES DE TAILLES OBTENUES DANS LA LITTÉRATURE

Dans la littérature, on trouve des gouttelettes ou des bulles ayant des diamètres variables. La table 1.1 présente des exemples des tailles obtenues par l'utilisation de T-jonction ou du flow-focusing comme générateur de gouttelettes/bulles. Les diamètres des gouttelettes/bulles générées dans ces deux géométries ont le même ordre de grandeur, ce qui montre que la géométrie de jonction en T, est tout à fait adaptée à la génération de gouttelettes/bulles de très petite taille.

Il faut noter que le groupe de Tabeling [47] à Paris a pu générer des gouttelettes d'eau dans l'huile ayant un diamètre légèrement inférieur à  $1 \mu\text{m}$ . Pour cela, ils ont utilisé une nouvelle géométrie composée de cross-jonction et de terrasse comme le montre la figure 1.9.

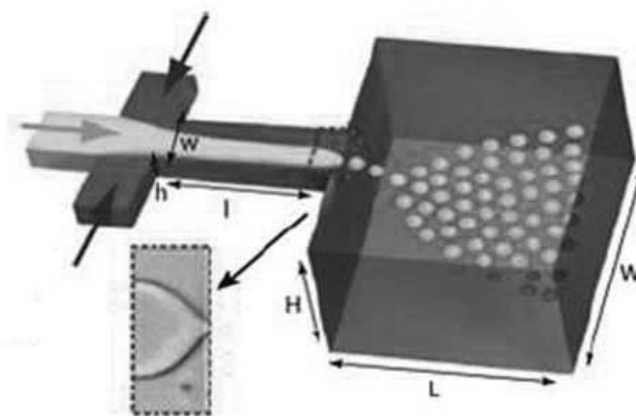


FIGURE 1.9 – Géométrie utilisée par le groupe de Tabeling pour générer des gouttelettes d'eau dans l'huile de petites tailles ( $<1 \mu\text{m}$ ) avec :  $H = 10 \mu\text{m}$ ,  $L = 5000 \mu\text{m}$ ,  $W = 40\text{-}100 \mu\text{m}$ ,  $h = 420 \text{ nm-}1 \mu\text{m}$ ,  $l = 50 \mu\text{m}$  et  $w = 5\text{-}10 \mu\text{m}$  [47].

| Phases<br>Continue/Dispersée                                  | Section<br>Largeur ( $\mu\text{m}$ )/profondeur ( $\mu\text{m}$ )                    | Géométries     | Diamètre<br>( $\mu\text{m}$ ) |
|---|--|----------------|-------------------------------|
| Eau/Air   | 200×200  | T-jonction     | 800 [39]                      |
| Eau/Hexadécane<br>Eau /Octane<br>Hexadécane/Eau<br>Octane/Eau | 150×100<br>(phase continue)<br>et 250×200<br>(phase dispersée)                       | Cross-jonction | 300 [42]                      |
| Eau/Air   | 300×200<br>(phase continue)<br>et 200×200<br>(phase dispersée)                       | T-jonction     | 100 [36]                      |
| Eau/Azote   | 600×600  | Flow-focusing  | 100 [33]                      |
| PFO/Eau   | 90×90  | T-jonction     | 75 [43]                       |
| Eau/Argon   | 80×25  | T-jonction     | 25 [44]                       |
| Eau/Huile   | 35×6.5   | T-jonction     | 12 [37]                       |
| Eau/Azote   | 30×25  | Flow-focusing  | 5 [45]                        |
| Eau/Air   | 100×100  | T-jonction     | 4.5 [15]                      |
| Huile minérale/Eau  | 280×98<br>(phase continue)<br>et 180×98 rétrécissant à<br>34×98<br>(phase dispersée) | Flow-focusing  | 1.5 [46]                      |

TABLE 1.1 – Exemples des gouttelettes ou des bulles des diamètres différents présents dans la littérature.

Dans ce cas, la formation de la gouttelette est basée sur un phénomène de focalisation (par des forces capillaires) de la phase dispersée à son arrivée dans le réservoir de grande profondeur.

#### 1.4.2.2/ MODÉLISATION DE LA TAILLE DE GOUTTELETTES GÉNÉRÉES DANS LA JONCTION EN T

Depuis ces dernières années, plusieurs auteurs ont essayé d'exprimer la taille des gouttelettes obtenues sous forme d'une équation mathématique.

En effet, Thorsen et al. [37] étaient les premiers à initier la modélisation de la taille des gouttelettes générées en régime dripping (paragraphe 1.4.3.2) dans une jonction en T. En se basant sur les travaux de Taylor [48], et par analogie avec la formation des émulsions, ils ont trouvé une équation simple permettant l'estimation de la taille de la gouttelette :

$$\frac{d}{w_c} \approx \frac{\sigma}{\mu_c v_c} \quad (1.11)$$

avec  $d$  le diamètre de la gouttelette,  $w_c$  la largeur du microcanal contenant la phase continue,  $\sigma$  la tension de surface ou la tension interfaciale entre la phase continue et la phase dispersée,  $\mu_c$  la viscosité de la phase continue et  $v_c$  la vitesse de la phase continue dans la zone entre le gonflement de la gouttelette et les parois du microcanal.

L'équation simplifiée de Thorsen a été ensuite paramétrée par Xu et al. [49]. Ces derniers considèrent que l'équation 1.11 n'est valable que pour un nombre capillaire  $Ca > 0,2$ . Alors

ils proposent pour un nombre capillaire  $0,01 < Ca < 0,2$ , l'équation 1.12 :

$$\frac{d}{w_c} = \left(\frac{\sigma}{\mu_c v_c}\right) \left(\frac{w_c h - 0,785d^2}{w_c h}\right) \quad (1.12)$$

Alors que Fu et al. [50] ont trouvé l'équation 1.13 pour lier le diamètre de la gouttelette au nombre capillaire.

$$\frac{d}{w_c} = 1.42Ca_c^{-0.11} \quad (1.13)$$

Une autre façon d'exprimer la taille de la gouttelette générée est de considérer que sa formation passe par deux stades principaux : stade de gonflement et stade de détachement. Cette idée de deux stades de formation de la gouttelette a été inspirée par un papier de Peng et Williams publié en 1998 [51]. Dans ce cas, la formation de la gouttelette a lieu dans une membrane et non pas dans des canaux, et est donc libérée des interactions avec les parois (figure 1.10). Van der Graaf [35] suggère que le stade de gonflement dure jusqu'à

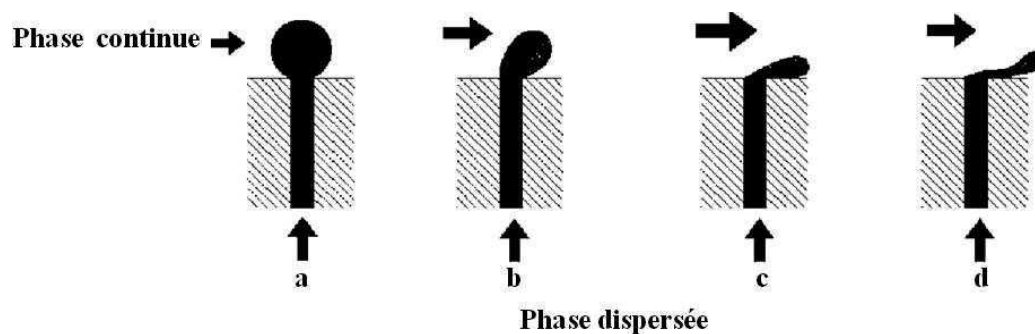


FIGURE 1.10 – Illustration de la formation et du détachement de la goutte dans une membrane sous différentes conditions, avec : force de cisaillement faible ou négligeable (a), force de cisaillement élevée par rapport à la tension interfaciale (b), angle de contact très petit ou force de cisaillement très grande (c) et surface de la membrane mouillée par la phase dispersée (d) [51].

ce que la force de drag exercée sur la gouttelette est équilibrée par la force de tension qui retient la gouttelette et qui apparaît dans le microcanal contenant la phase dispersée (figure 1.11 b). La gouttelette a alors un volume  $V_{crit}$ . Le deuxième stade de gonflement est caractérisé par un temps  $t_{neck}$  qui est en fait le temps nécessaire pour que la phase continue puisse détacher la gouttelette et la libérer complètement (figure 1.11 c). La durée de cette deuxième phase n'a pas été donnée explicitement et ainsi pour trouver le volume de la gouttelette  $V_g$ , ils ont simplement écrit :

$$V_g = V_{crit} + t_{neck}Q_d \quad (1.14)$$

avec  $Q_d$  le débit de la phase dispersée.

En 2006, l'équation 1.14 a été paramétrée par l'auteur lui-même [52] en introduisant la notion du nombre capillaire  $Ca$ , ainsi l'équation devient :

$$V_g = V_{crit}Ca^m + t_{neck}Ca^nQ_d \quad (1.15)$$

avec m et n des coefficients déterminés expérimentalement.

Garstecki et al. [53] proposent, après une analyse détaillée des différentes forces physiques présentes dans le système, un autre processus de formation de gouttelettes toujours



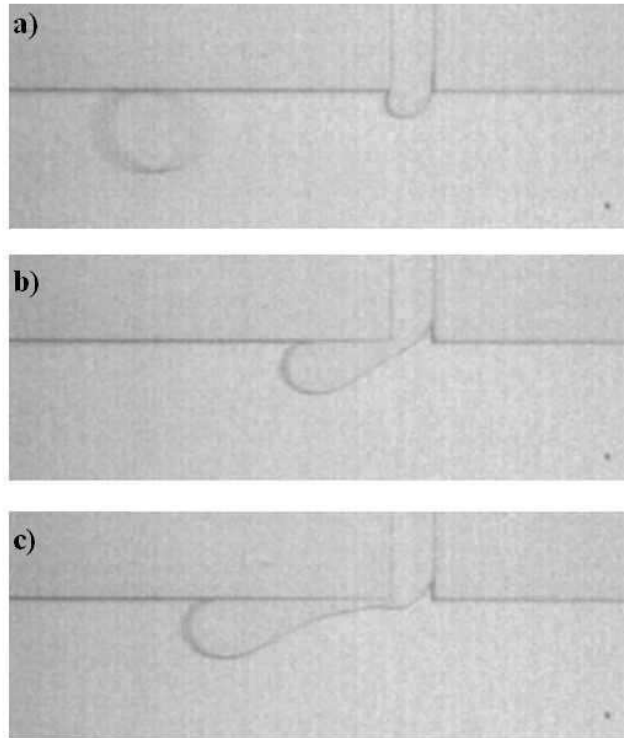


FIGURE 1.11 – Formation des gouttelettes d’héxadécane dans l’eau déionisée, avec : la gouttelette précédente vient juste de se détacher (a), la gouttelette est en stade de gonflement (b) et la nouvelle gouttelette va se détacher (c) [35].

composé de deux stades, mais étant donné qu’ils ont étudié le régime squeezing (paragraphe 1.4.3.1), il a simplement exprimé  $V_{crit}$  comme étant le volume de la gouttelette ayant une longueur  $L$  et remplissant la totalité du microcanal, mais encore une fois le temps  $t_{neck}$  a été exprimé d’une façon empirique, et le volume de la gouttelette  $V_g$  est donné par :

$$V_g = Lw_ch = w_c^2 h \left(1 + \alpha \frac{Q_d}{Q_c}\right) \quad (1.16)$$

avec  $w_c$  la largeur du microcanal de la phase continue,  $h$  la profondeur des microcanaux et  $\alpha$  une constante qui dépend de la géométrie de la jonction en T.

Xu et al. [49] ont paramétré l’équation 1.16, en traitant plusieurs données de la littérature :

$$V_g = w_c^2 h \left(\epsilon + \omega \frac{Q_d}{Q_c}\right) \quad (1.17)$$

avec  $\epsilon$  et  $\omega$  sont des paramètres ajustés dépendant de la géométrie.

Christopher [54] a adapté les travaux de Garstecki pour le régime dripping, en essayant d’écrire un équilibre de forces pour obtenir  $V_{crit}$ . En fait, il a pris comme force de maintien la force de Laplace et comme force de drag la somme de la force de cisaillement et la force de pression estimée par la chute de pression le long de la longueur de la gouttelette dans le microcanal de la phase continue. Alors que pour  $t_{neck}$ , il l’a estimé empiriquement comme étant le rapport entre la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$ , sur la vitesse du fluide dans le microcanal de la phase continue  $v_c$  :  $t_{neck} \approx \frac{w_d}{v_c}$ .

### 1.4.2.3/ CONCLUSION

Plusieurs systèmes ont été mis en oeuvre depuis ces dernières années pour générer des gouttelettes monodispersées et ayant des tailles qui varient dans une large gamme.

La génération de gouttelettes dans les microcanaux fluidiques n'est pas un phénomène simple puisqu'elle dépend de plusieurs paramètres. Afin de comprendre ce phénomène, plusieurs études ont été faites mais jusqu'à présent, il n'y a pas un modèle continu de taille des gouttelettes capable de réunir tous les régimes de génération de gouttelettes. Tous les travaux faits même les plus récents [40] ne sont applicables que dans les conditions restreintes des expériences réalisées. En fait chaque auteur ajuste son modèle à un ensemble de données expérimentales, et la modélisation est largement empirique.

### 1.4.3/ RÉGIMES DE GÉNÉRATION DANS UNE JONCTION EN T

Le cisaillement appliqué par la phase continue sur la phase dispersée est à l'origine de la formation des gouttelettes ou des bulles dans les microsystèmes fluidiques diphasiques en T-jonction. En effet, le cisaillement étire l'interface entre les deux fluides favorisant ainsi la génération de gouttelettes ou de bulles. Le nombre capillaire  $Ca$  peut caractériser ce phénomène puisqu'il compare la force de cisaillement à la force interfaciale (équation 1.10)

En se basant sur la valeur du nombre capillaire, on a identifié, dans la littérature, trois régimes de génération de gouttelettes ou de bulles :

#### 1.4.3.1/ RÉGIME "SQUEEZING"

Dans ce régime (observé à des faibles valeurs de  $Ca$ ), la génération de gouttelettes ou de bulles a lieu à l'intersection des deux phases. Les gouttelettes ou les bulles obtenues sont en contact avec les parois du microcanal et ne sont pas sphériques, mais ont une forme allongée (plugs) comme le montre la figure 1.12. La taille de ces "plugs" dépend

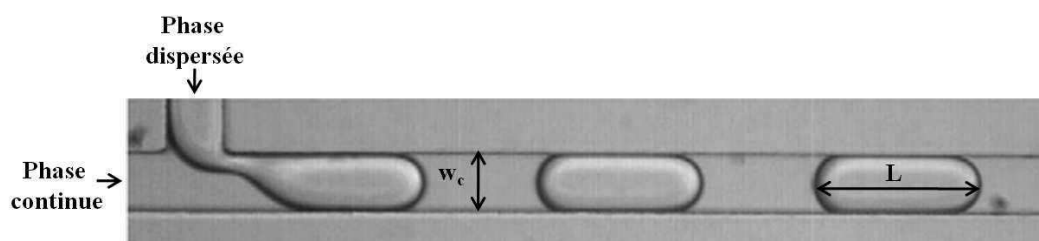


FIGURE 1.12 – Schéma représentatif de la génération de gouttelettes dans une jonction en T en régime squeezing [55].

essentiellement des débits des phases continue et dispersée, mais ne dépend pas du nombre capillaire  $Ca$  car la force dominante est la force interfaciale. La longueur  $L$  de ces plugs est liée au rapport de débits  $\frac{Q_d}{Q_c}$  par la relation [53] :

$$\frac{L}{w_c} = 1 + \alpha \frac{Q_d}{Q_c} \quad (1.18)$$

avec  $L$  la longueur des plugs,  $w_c$  la largeur du microcanal portant la phase continue,  $\alpha$  une constante liée à la géométrie, et  $\frac{Q_d}{Q_c}$  le rapport entre le débit de la phase dispersée et celui de la phase continue.

Selon Garstecki et al. [53], la chute de pression dans le canal principal résultant de la présence de la phase dispersée est le responsable de la rupture de ces plugs.

Plus précisément, le phénomène de la rupture peut être expliqué de la manière suivante : la phase dispersée entre progressivement dans le canal principal contenant la phase continue et commence à en subir le cisaillement. Un étranglement se forme à la sortie du canal secondaire. Plus la phase dispersée avance dans le canal principal, plus cet étranglement se rétrécit jusqu'à ce qu'il se coupe en formant une gouttelette (ou une bulle), qui sera entraînée vers l'avant du microcanal par la phase porteuse (phase continue).

#### 1.4.3.2/ RÉGIME "DRIPPING"

Dans ce régime de génération (observé à des grandes valeurs de  $Ca$ ), la force visqueuse est la force dominante gérant le détachement de la gouttelette ou de la bulle qui intervient juste après l'intersection des deux phases.

Les gouttelettes ou les bulles générées sont sphériques et ont une taille inférieure à la dimension du microcanal (figure 1.13). Cette taille est une fonction du nombre capillaire

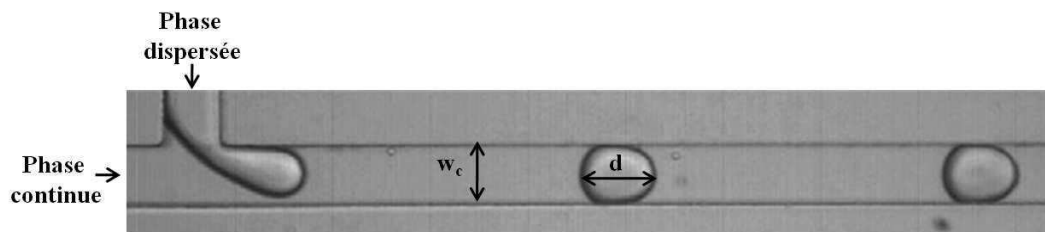


FIGURE 1.13 – Schéma représentatif de la génération de gouttelettes dans une jonction en T en régime dripping [55].

$Ca$ , mais il n'existe pas une équation générale applicable pour tous les microsystèmes fluidiques (voir 1.4.2.2), chaque expérience est un cas particulier [50, 56].

#### 1.4.3.3/ RÉGIME "JETTING"

Les gouttelettes ou les bulles générées sont aussi sphériques, mais ont une taille beaucoup plus petite que celle du microcanal. La phase dispersée forme un long filament dans le microcanal de la phase continue et ainsi la génération intervient plus loin qu'à l'intersection entre les deux phases (figure 1.14) et avec une fréquence de production élevée. Ce régime de



FIGURE 1.14 – Schéma représentatif de la génération de gouttelettes dans une jonction en T en régime jetting [55].

génération présente l'avantage de générer des gouttelettes ou des bulles de petite taille, mais la zone de variation des paramètres de contrôle dans laquelle il apparait est souvent très restreinte et difficile à atteindre. En plus lorsque les gouttelettes ou les bulles deviennent très petites par rapport au diamètre du microcanal, le régime "jetting" tend à devenir chaotique [56].

#### 1.4.3.4/ CONCLUSION

La comparaison entre les différents régimes montre que la stabilité et le mécanisme de génération du régime dripping le rendent le mieux placé pour générer des gouttelettes de petite taille.

La valeur exacte du nombre capillaire  $Ca$  donnant les différents régimes, ainsi que les équations liant la taille des gouttelettes ou des bulles à ce nombre, dépendent des conditions expérimentales comme la géométrie (dimension des microcanaux, profondeur des microcanaux...), et les propriétés physiques des fluides utilisés (la viscosité et la tension de surface ou la tension interfaciale...).

La table 1.2 résume les valeurs du nombre capillaire (obtenues par quelques groupes de recherche) pour lesquelles la génération de la gouttelette ou de la bulle dans une géométrie en T-jonction suit le régime squeezing ou le régime dripping ou un régime transitoire entre ces deux régimes. Pour conclure, on peut dire que le nombre capillaire  $Ca$  n'est pas un

| Auteurs    |                    | Fu et al.<br>[50]       | Sivasamy<br>et al. [57] | Xu et al.<br>[49]      |
|------------|--------------------|-------------------------|-------------------------|------------------------|
| Système    |                    | Azote dans<br>l'eau     | Eau dans<br>d'huile     | Eau dans<br>d'huile    |
| Expérience | $v$ (m/s)          | $0,003 < v_c < 11,8$    |                         | $0,001 < v < 0,1$      |
|            | $Q$ ( $\mu$ L/min) |                         | $Q_d = 0,8$             |                        |
|            | $\mu_c$ (mPa.s)    | $0,92 < \mu_c < 10,18$  | $= 23,8$                | $0,68 < \mu_c < 10,84$ |
|            | $\sigma$ (mN/m)    | $31,5 < \sigma < 72$    | $3,65$                  | $1,6 < \sigma < 3,6$   |
| Géométrie  | $w_c$ ( $\mu$ m)   | 120                     | 200                     | 200                    |
|            | $w_d$ ( $\mu$ m)   | 120                     | 100                     | 40                     |
|            | $h$ ( $\mu$ m)     | 40                      | 100                     | 150                    |
| Ca         | Squeezing          | $10^{-4} < Ca < 0,0058$ | $Ca = 0,01$             | $Ca < 0,002$           |
|            | Dripping           | $0,013 < Ca < 1$        | $Ca = 0,025$            | $0,01 < Ca < 0,3$      |
|            | Transition         | $0,0058 < Ca < 0,013$   | $0,014 < Ca < 0,018$    | $0,002 < Ca < 0,01$    |

TABLE 1.2 – Exemples des valeurs du nombre capillaire présents dans la littérature, et déterminant le régime de génération de gouttelettes/bulles dans une jonction en T.

nombre absolu en lui-même et sa valeur exacte n'est pas vraiment un critère de distinction des régimes de génération de gouttelettes/bulles, mais plutôt une indication qui aide à savoir la balance des forces mises en jeu (force de cisaillement et force interfaciale).

#### 1.4.4/ PARAMÈTRES CONTRÔLANT LA GÉNÉRATION

##### 1.4.4.1/ VISCOSITÉ

La viscosité des phases dispersée et continue joue un rôle important dans la formation des gouttelettes. Plusieurs études ont été faites pour montrer cet effet sur la taille des gouttelettes générées.

Nie et al. [58] ont étudié une série d'huile utilisée comme phase dispersée et dont la viscosité  $\mu_d$  varie entre 1 et 500 mPa.s. La phase continue a une viscosité constante. Ils montrent que la taille de la gouttelette est inversement proportionnelle à la viscosité de la phase dispersée.

De même Kobayashi et al. [59], ont constaté que la taille des gouttelettes d'huile dans l'eau est largement influencée par la viscosité de la phase dispersée, et non pas par la nature chimique d'huile utilisée. Mais ils ont montré que cette taille diminue quand la viscosité de la phase dispersée augmente jusqu'à arriver à un seuil (100 mPa.s), à partir duquel la taille commence à augmenter légèrement avec  $\mu_d$ .

Husny et Cooper-White [60] ont réalisé des études sur la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile en faisant varier la viscosité des deux phases. Ils concluent que le rapport de viscosité  $\mu_c/\mu_d$  a une influence non seulement sur la taille des gouttelettes générées mais aussi sur le mécanisme de génération. Ainsi, plus ce rapport est important, plus la gouttelette est petite.

Alors que J.Wacker et al. [61] ont montré que la composition chimique d'huile (utilisée comme une phase continue) a plus d'influence sur la taille des gouttelettes que sa viscosité.

Pour conclure, on peut dire que l'influence des viscosités de la phase continue et de la phase dispersée sur la taille des gouttelettes dépend des conditions expérimentales, comme la géométrie et les propriétés des surfaces des microcanaux [41].

En se basant sur ces études et comme la température influe énormément sur la viscosité, on comprend que pour obtenir une bonne répétitivité des expériences il faudra générer les gouttelettes/bulles à une température constante.

##### 1.4.4.2/ TENSION DE SURFACE OU TENSION INTERFACIALE

A l'échelle micrométrique, une des forces gérant la génération de gouttelettes ou de bulles est la tension interfaciale qui stabilise l'interface entre les deux fluides en contact. Plus cette tension est élevée plus l'énergie nécessaire pour la vaincre est importante et donc plus il sera difficile de générer une gouttelette ou une bulle. Cramer et al. [26] ont constaté que pour une même phase continue et pour deux phases dispersées ayant des densités et des viscosités proches, les plus petites gouttelettes sont obtenues avec la phase dispersée ayant la tension interfaciale la plus faible.

Généralement, des agents de surfaces sont ajoutés pour stabiliser les gouttelettes ou les bulles générées. Ces tensioactifs ont une partie hydrophile et une partie hydrophobe et ils se mettent à l'interface entre la phase huileuse et la phase aqueuse (ou à la surface entre le gaz et la deuxième phase), et réduisent ainsi la tension interfaciale (ou la tension de surface). Parmi ces tensioactifs, on peut distinguer :

- Les tensioactifs ajoutés à la phase aqueuse : sont des tensioactifs ayant des valeurs élevées de HLB (hydrophile-lipophile-balance) comme le polyoxyéthylène sorbitan monolaurate (Tween 20 : HLB = 16,7) [62, 63, 64]...
- Les tensioactifs ajoutés à la phase huileuse : sont des tensioactifs ayant des faibles valeurs de HLB comme le monooléate de sorbitan (Span 80 : HLB = 4,3) [62, 65]...

Xu et al. [63] ont suivi l'évolution de la tension interfaciale eau-huile de silicone en fonction de la quantité de tensioactif ajoutée. Pour générer des gouttelettes d'huile dans l'eau, et des gouttelettes d'eau dans l'huile, le Tween 20 et le Span 80 ont été utilisés respectivement comme agent de surface et ajoutés à la phase continue. Ils ont montré que dans les deux cas, la tension interfaciale diminue avec l'augmentation du pourcentage de tensioactif en solution jusqu'à atteindre le palier de la concentration micellaire critique. Kukizaki et Baba [64], ont étudié l'effet de la nature des tensioactifs sur la taille et la monodispersité des bulles d'air dans l'eau. Trois types de tensioactifs ont été ajoutés à la phase aqueuse : le sodium n-dodécylbenzenesulfonate (SDBS : HLB = 36.7 [66]) (tensioactif anionique), le polyoxyéthylène sorbitan monolaurate (Tween 20 : HLB = 16.7) (tensioactif non ionique) et le cetyltriméthylammonium bromide (CTAB : HLB = 10 [66],) (tensioactif cationique). Ils ont constaté que les bulles générées en présence de CTAB sont polydispersées, alors que celles générées en présence de Tween 20 et de SDBS sont monodispersées. Dans les mêmes conditions, les bulles formées en présence de SDBS sont plus petites que celles formées en présence des deux autres tensioactifs.

#### 1.4.4.3/ MOUILLABILITÉ

L'interaction d'un fluide avec les parois des microcanaux traduit sa mouillabilité. Dreyfus et al. [65] ont montré que pour deux fluides immiscibles, le fluide mouillant le plus les parois des microcanaux va être en contact avec ses parois et donc va disperser le second fluide. Ainsi pour générer des gouttelettes d'huile dans l'eau, les parois des microcanaux doivent être plutôt hydrophiles et vice-versa.

L'ajout des tensioactifs peut modifier la mouillabilité d'un fluide sur les parois des microcanaux. Xu et al. [63] ont étudié la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile et d'huile dans l'eau dans un même microréacteur en PMMA. L'ajout des tensioactifs (Span 80) dans la phase continue huileuse, a transformé la surface de PMMA partiellement hydrophile en une surface totalement hydrophobe favorisant ainsi la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile. L'ajout des tensioactifs (Tween 20) dans la phase continue aqueuse, a transformé la surface de PMMA de partiellement hydrophile à une surface totalement hydrophile, ce qui favorise la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau.

On note que dans la littérature on trouve une forte majorité de systèmes microfluidiques dédiés à la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile plutôt que des gouttelettes d'huile dans l'eau, apparemment parce que ces derniers sont moins simples à former.

#### 1.4.4.4/ DÉBITS DES DEUX PHASES

La vitesse d'écoulement des phases continue et dispersée influent sur la génération de gouttelettes et de bulles. Ainsi plusieurs études ont été faites pour montrer l'effet des débits de la phase continue  $Q_c$  et de la phase dispersée  $Q_d$  sur la taille des gouttelettes et des bulles, et elles ont montré que :

- En fixant  $Q_d$ , la taille des gouttelettes ou des bulles diminue lorsque  $Q_c$  augmente [53, 67].

- En fixant  $Q_c$ , la taille des gouttelettes ou des bulles augmente en augmentant  $Q_d$  [39, 52].
- En faisant varier les débits des deux phases, plus le rapport  $\frac{Q_c}{Q_d}$  est important, plus les gouttelettes ou les bulles sont petites [39, 29].

En plus de ses effets sur la taille des gouttelettes ou des bulles, les débits des deux phases influent aussi sur la forme des gouttelettes ou des bulles [36, 29].

Les débits des phases continue et dispersée sont donc des paramètres importants à étudier afin de contrôler la génération de gouttelettes/bulles, et plus particulièrement la forme et la taille de ces gouttelettes/bulles.

#### 1.4.4.5/ GÉOMÉTRIE DES MICROCANAU

En plus des paramètres cités ci-dessus, la taille et la forme des microcanaux des phases continue et dispersée affectent la taille des gouttelettes et des bulles générées.

Pour la dimension du microcanal de la phase dispersée, Bouquey et al. [68] ont montré que la taille des gouttelettes diminue quand la dimension de l'aiguille utilisée pour introduire la phase dispersée dans la phase continue diminue, alors que Sugura et al. [69] ont montré que la diminution de la largeur du microcanal de la phase dispersée n'a pas d'effet sur la taille des gouttelettes générées, mais aboutit seulement à une diminution du temps de détachement de ces gouttelettes. D'autres études montrent aussi des résultats opposés sur l'influence de ce paramètre.

Pour la dimension du microcanal de la phase continue, les études montrent de façon consistante que la taille des gouttelettes générées dans une jonction en T diminue quand la largeur du microcanal contenant la phase continue diminue [53, 70].

La géométrie des microcanaux constitue donc un des paramètres importants pour contrôler la taille des gouttelettes/bulles, et mériterait une étude plus approfondie sur l'influence des dimensions du microcanal de la phase continue, mais surtout les dimensions du microcanal de la phase dispersée.

### 1.5/ FABRICATION DES MICROCANAU

D'une façon générale, la fabrication des microcanaux dédiés à la génération de gouttelettes/bulles nécessite la présence de trois étapes principales (figure 1.15) :

1. Réalisation des microcanaux ouverts.
2. Fermeture du système microfluidique par capotage en utilisant le verre comme matériau pour avoir un système fermé, mais aussi bien transparent permettant ainsi la visualisation des gouttelettes/bulles générées.
3. Interfaçage avec l'extérieur permettant d'avoir une connexion entre le système microfluidique et la source d'injection des fluides.

Plusieurs techniques de fabrication des microcanaux ont été mises en oeuvre depuis ces dernières années [71]. De même plusieurs matériaux ont été utilisés pour fabriquer ces réacteurs microfluidiques, comme le polyméthylméthacrylate (PMMA) [36, 39], le prépolymère au thiolène [72], le Kapton (polyimide) [73]... Ces matériaux sont utilisés pour faire face à certaines conditions opératoires exigeantes.

Mais les matériaux les plus utilisés pour la fabrication des microcanaux fluidiques sont le polydiméthylsiloxane PDMS [15, 29, 67], le verre [61] et le silicium. Ces trois techniques

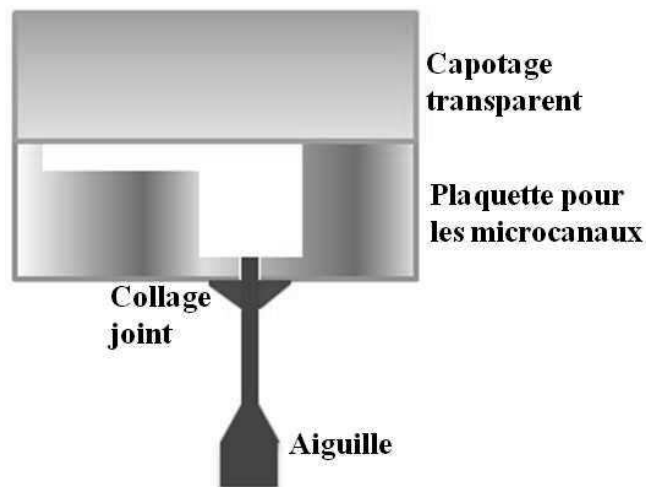


FIGURE 1.15 – Système utilisé pour la génération de gouttelettes.

nécessitent la reproduction des motifs des microcanaux soit pour marquer le substrat à graver (technologie verre ou silicium), soit pour réaliser un moule (technologie PDMS).

Dans les paragraphes suivants, nous détaillons la fabrication des microcanaux basée sur ces trois matériaux.

### 1.5.1/ TECHNOLOGIE PDMS

Le PDMS est un polymère organique dont la formule de base est le  $[\text{SiO}(\text{CH}_3)_2]_n$ . Selon le nombre  $n$  de ce motif, le PDMS se présente soit sous la forme d'un liquide visqueux (faible valeur de  $n$ ), soit sous la forme d'un solide élastique (valeur élevée de  $n$ ). Ce sont les liaisons siloxanes qui lui confèrent son élasticité.

Ainsi pour préparer les dispositifs microfluidiques en PDMS, plusieurs étapes sont nécessaires :

- Préparation du moule par photolithographie généralement avec la résine SU-8.
- Mélange du PDMS avec un agent durcisseur pour former un élastomère.
- Dégazage du mélange PDMS-durcisseur pour éliminer les bulles d'air.
- Cuisson du mélange déjà versé sur le moule. La durée et la température déterminent les propriétés mécaniques de l'élastomère.
- Démoulage du PDMS et perçage à l'extrémité des microcanaux pour insérer les connexions microfluidiques pour l'entrée et la sortie des fluides.
- Fermeture du système microfluidique par une plaquette de verre. L'assemblage se fait par simple mise en contact après activation de surface dans une chambre plasma.

Plusieurs caractéristiques font du PDMS un matériau de grand intérêt dans la fabrication des systèmes microfluidiques : sa transparence dans le domaine UV-visible, son inertie chimique, sa faible polarité et sa faible conductivité électrique et son élasticité [74, 75]. En plus de ses propriétés physiques intéressantes, le PDMS est facile à mettre en oeuvre et il est peu coûteux par rapport aux autres matériaux comme le verre ou le silicium.

Malgré ses avantages, le PDMS ne résiste pas à des hautes pressions, ni aux solvants agressifs comme l'acétone ou l'éther [76]. Ceux-ci causent son gonflement et rendent par la suite le système microfluidique inutilisable. En plus le caractère hydrophobe du PDMS rend difficile le passage d'eau dans les microcanaux [75], et ainsi la génération de gouttelettes



d'huile dans l'eau ou de bulles d'air dans l'eau n'est pas recommandée par cette technique. Plusieurs méthodes sont utilisées pour modifier le caractère hydrophobe du PDMS comme l'exposition des microcanaux à des plasmas [77], ou à des rayons ultraviolets [78], mais ces traitements ne sont valables qu'à court terme et la surface des microcanaux ne peut pas être hydrophile d'une façon permanente.

### 1.5.2/ TECHNOLOGIE VERRE

Le procédé de fabrication des microcanaux fluidiques en verre (quartz, pyrex, borosilicate...), comporte plusieurs étapes :

- Dépôt d'une fine couche métallique (chrome, titane...) sur la plaquette pour protéger le verre lors de la gravure (la couche joue le rôle d'un masque).
- Marquage de la zone à graver par photolithographie.
- Gravure humide de verre pour réaliser les microcanaux.
- Enlèvement de la couche métallique sacrificielle et de la résine.
- Fermeture par soudage thermique du système avec une deuxième plaquette de verre.

Les techniques utilisées pour la fabrication des microcanaux en verre sont plus ou moins coûteuses, mais ses propriétés intéressantes surtout sa transparence et sa résistance à la température, à la pression et aux solvants agressifs en font un matériau privilégié pour les systèmes microfluidiques [79].

### 1.5.3/ TECHNOLOGIE SILICIUM

Le silicium est un des matériaux le plus utilisé pour la fabrication des dispositifs microfluidiques. Il possède une très bonne résistance à la pression et aux solvants. Ce matériau à caractère hydrophile est adapté à la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau ou de bulles d'air dans l'eau, réalisée dans le cadre de cette thèse.

La fabrication des microcanaux dans des substrats en silicium nécessite le passage par les techniques de photolithographie et de gravure. Puis et dans le but de fermer les canaux usinés dans le silicium mais tout en assurant la transparence du système, un wafer de verre sera collé au wafer de silicium par soudure anodique.

Nous allons détailler chacune de ses étapes puisque la technologie silicium/verre est celle choisie pour réaliser nos microcanaux fluidiques.

#### 1.5.3.1/ PHOTOLITHOGRAPHIE

**Principe de la photolithographie** La photolithographie est une méthode classique utilisée dans la micro ou la nano fabrication [80]. Elle consiste à déposer une couche mince de résine photosensible à la surface d'un substrat de silicium. Cette couche sensible est ensuite exposée, partiellement, à une radiation lumineuse. Lors de cette étape, un masque de quartz avec des motifs en chrome (opaque aux rayonnements ultraviolets) est placé au dessus du substrat permettant ainsi aux rayonnements ultraviolets d'insoler seulement les zones voulues. Les motifs sont ensuite révélés dans un solvant chimique appelé développeur qui va éliminer sélectivement la zone soumise au rayonnement lors de l'exposition (résine positive) ou au contraire celle qui n'a pas été exposée (résine négative) [80, 81].

**Principales étapes de la photolithographie** La photolithographie comporte cinq étapes (figure 1.16) :

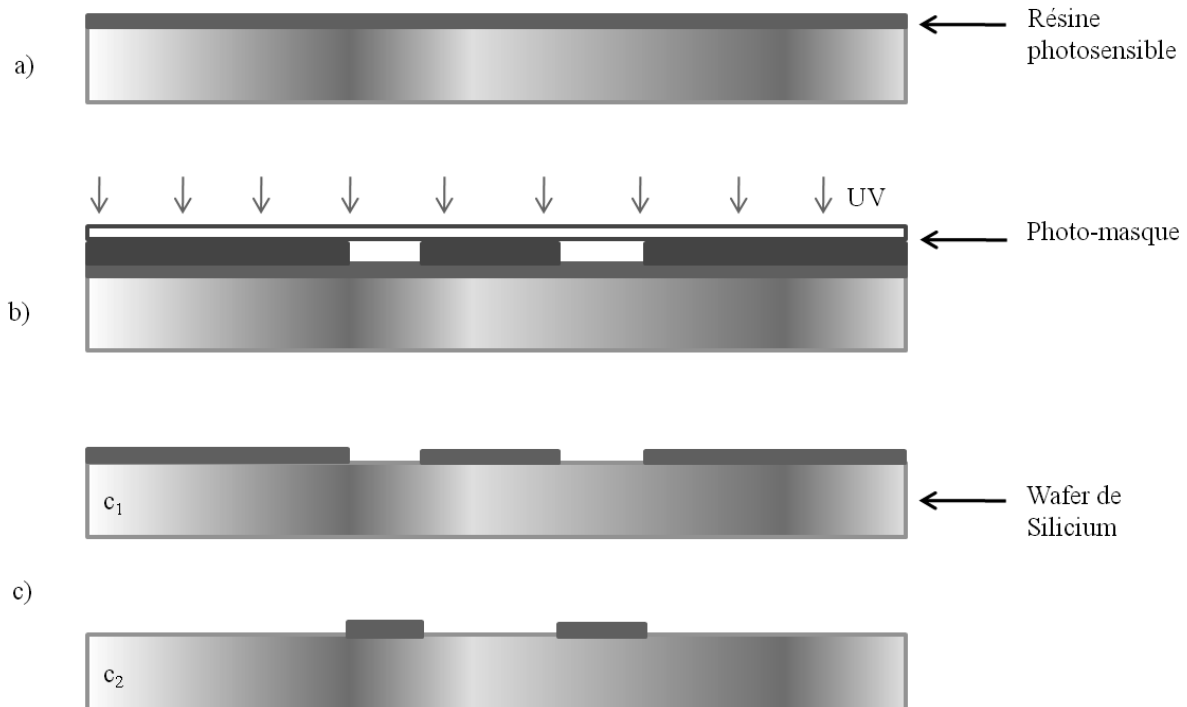


FIGURE 1.16 – Procédé de la photolithographie : dépôt d'un film de résine photosensible (a), insolation ultraviolette au travers d'un masque (b), développement de la résine (c) avec : cas d'une résine positive (c<sub>1</sub>) et cas d'une résine négative (c<sub>2</sub>).

### 1. Préparation du wafer :

Il s'agit d'une phase de nettoyage pour éliminer d'une part les poussières et les impuretés qui peuvent être présentes à la surface du wafer et d'autre part pour la déshydrater. Elle se fait en plongeant le wafer dans un b cher contenant de l'ac tone puis de l' thanol. Le wafer sera ensuite rinc    l'eau d ionis e puis s ch  par un flux d'azote.

### 2. D p t d'un film de r sine :

A l'aide d'une tournette, une mince couche homog ne d'un film photosensible, appel  r sine est  tal e sur une plaquette de silicium [82].

On d pose une petite quantit  de r sine sur la plaquette immobile en utilisant la tournette. Puis on y applique une forte acc l ration dans le but de former une couche uniforme de r sine sur toute la surface. L'application d'une acc l ration  lev e est recommand e pour avoir un temps courts d' talement de la r sine. Dans le cas contraire le solvant s' vapore diminuant ainsi la viscosit  de la r sine qui va changer l' paisseur de la couche d pos e. L' tape suivante consiste   augmenter la vitesse de rotation pour  liminer le surplus de la r sine et fixer son  paisseur finale.

La qualit  de la couche de r sine d pos e d pend de l'uniformit  de son  paisseur et de la pr sence ou pas des d fauts d    la pr sence des poussi res ou des manques sur le substrat [80].

### 3. Cuisson apr s d p t

Après le dépôt de résine sur la plaquette de silicium, une cuisson de cette dernière (généralement sur une plaque chauffante) est nécessaire, afin d'éliminer les solvants présents. Le taux de solvant restant après la cuisson est généralement entre 4 et 7 % [80]. Ce taux a une grande influence sur le développement de la résine qui se fait en dernière étape du procédé photolithographie : en effet un taux faible de solvant permet une dissolution rapide de la résine et vice-versa. Le recuit se fait généralement à une température voisine de 110 °C pendant 30 à 60 secondes [80], mais ces conditions peuvent être ajustées selon les types de résine dans le but d'atteindre le taux de solvant nécessaire. Après la cuisson, le substrat est refroidi pour être prêt à l'insolation.

#### 4. Insolation au travers d'un masque :

L'insolation du substrat consiste à éclairer, par une lampe à rayons ultraviolets, certaines zones de la résine à travers un masque et par l'utilisation d'un aligneur. Le masque utilisé est une plaque de quartz, transparente aux rayonnements ultraviolets, sur laquelle est déposée une couche de chrome qui a été structurée pour reproduire les motifs souhaités à l'aide d'un masqueur.

Par l'intermédiaire des croix d'alignement, ces motifs sont positionnés précisément par rapport à la plaquette de silicium. Après le positionnement du masque à la verticale de la région souhaitée, il est approché du substrat mais à une certaine distance (généralement  $< 1$  mm), pour éviter toute dégradation du masque dû au contact avec la résine. Une fois le masque et le substrat sont bien alignés et mis en contact, une exposition aux rayonnements ultraviolets se fait. Elle consiste à projeter l'ombre du motif qui figure à la surface du masque sur la résine. Cette dernière sera donc impressionnée par les rayonnements dans les zones où le quartz est nu, alors qu'elle restera intacte dans les zones chromées [81, 82].

La durée d'exposition de la résine est une étape critique du procédé car une résine sous-exposée entraîne une dégradation sensible de la résolution des motifs [80].

#### 5. Développement de la résine avec un solvant :

L'insolation par les rayonnements ultraviolets crée des réactions photochimiques dont le degré d'avancement dépend de l'intensité de la source lumineuse utilisée, du temps d'exposition et de la sensibilité de la résine. Des modifications chimiques (solubilité) au sein de la résine apparaissent [80]. Ainsi, par exemple, quand une résine positive est exposée aux rayonnements UV, elle libère les liaisons hydrogènes et forme de l'acide carboxylique qui à son tour augmente la solubilité des parties exposées.

Les solvants spécifiques contenus dans le développeur vont dissoudre les zones soumises aux rayonnements ultraviolets (cas des résine positives) ou au contraire, les zones non-exposées (cas des résine négatives), laissant des zones du substrat sans protection, et donc sensibles à la gravure [81, 82].

### 1.5.3.2/ GRAVURE

La gravure consiste à éliminer la couche du substrat dans toutes les régions non recouvertes de résine, les motifs du masque seront alors reproduits sur la couche inférieure.

La gravure peut être faite par deux voies : voie chimique ou voie physique.

**Gravure chimique** La gravure chimique consiste à plonger le substrat (en partie protégée), dans une solution qui va attaquer chimiquement la surface du wafer non-masquée.

C'est la raison pour laquelle la gravure chimique est appelée gravure humide (chemical wet etching). Le processus de gravure humide comporte trois étapes principales :

- Transport du réactant vers la surface
- Réaction chimique
- Évacuation des produits de la réaction chimique de la surface.

Deux types d'attaques sont présents :

#### 1. Attaque isotrope (figure 1.17)

Dans ce cas, la vitesse d'attaque ne dépend pas de la direction. L'acide fluorhydrique HF est utilisé à cause de sa capacité à réagir avec la couche dioxyde de silicium  $\text{SiO}_2$  qui se forme naturellement à la surface de substrat. Mais généralement ce type d'attaque conduit à une sous-gravure c'est-à-dire une attaque isotrope du substrat ou de la couche sacrificielle provoquant ainsi une dégradation indésirable du matériau placé sous la résine insolée sensée le protéger. Cela peut provoquer des nombreux problèmes surtout à des petites échelles, par exemple si les zones qu'on souhaite graver sont proches les unes des autres, il arrive parfois que non seulement ces zones sont gravées mais aussi les espaces interstitiels. C'est la raison pour laquelle l'attaque anisotrope est de plus en plus utilisée [83].

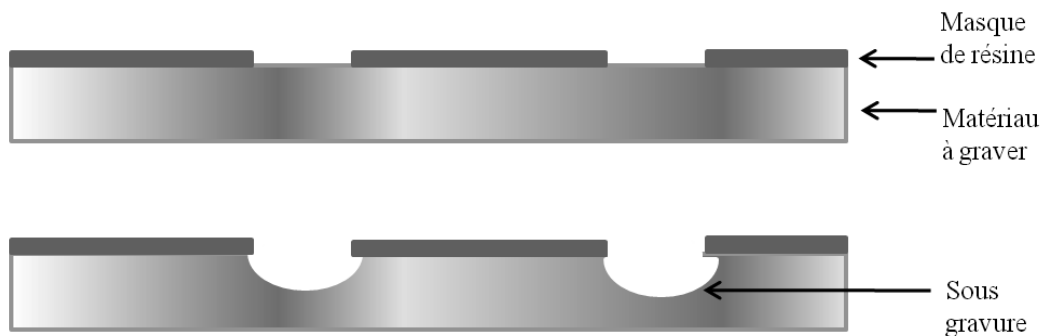


FIGURE 1.17 – Gravure humide des couches minces (attaque isotrope).

#### 2. Attaque anisotrope (figure 1.18)

Le silicium monocristallin présente une structure cristallographique du type cubique face centrée.

La vitesse d'attaque dépend de l'orientation cristalline des matériaux. L'hydroxyde de potassium KOH attaque préférentiellement les plans  $\langle 100 \rangle$  du silicium par rapport aux plans  $\langle 111 \rangle$ , un facteur de 400 entre les vitesses d'attaque de ces deux familles de plans a pu être mis en évidence [83].

La gravure par voie chimique est recommandée pour ces différentes raisons :

- Elle est facilement utilisable (le substrat est gravé dans un bain à température ambiante ou un bain thermostaté) ;
- Elle est relativement rapide (le taux de gravure est élevé), ce qui permet d'éviter la destruction de la couche protectrice, et donc la gravure des zones indésirables ;
- Elle présente une bonne sélectivité des matériaux.

Par contre la gravure par voie chimique donne généralement des profils de gravure semi-circulaires (figure 1.18). Afin de résoudre ce problème, des gravures par voie physique ont été développées.

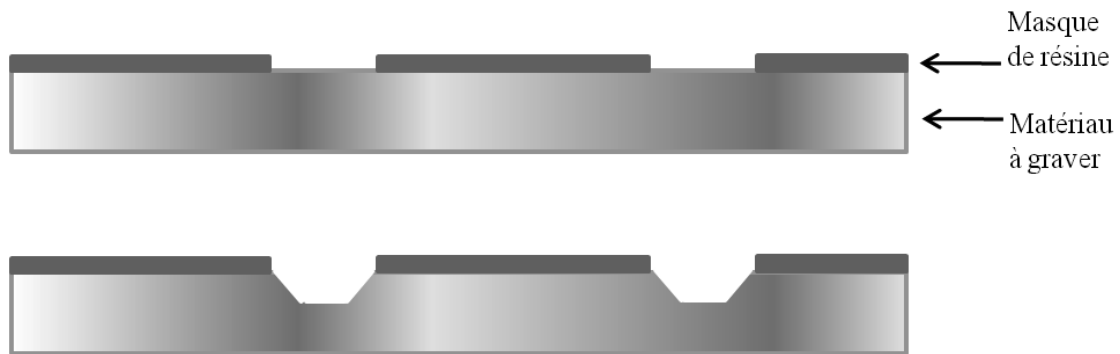


FIGURE 1.18 – Gravure humide des couches minces (attaque anisotrope).

**Gravure physique** Pour résoudre les problèmes de sous-gravure et de compatibilité des couches résultant de la gravure humide, des gravures sèches ont été mises en oeuvre depuis de nombreuses années. Ce type de gravure conduit à l'obtention des flancs verticaux et il est donc adapté à nos besoins puisqu'on cherche à former des canaux microfluidiques aux flancs verticaux.

#### 1. Gravure ionique

Selon J. Coburn et H.F. Winters [84, 85], la gravure ionique par plasma est une gravure basée sur une synergie entre les ions et les neutres du plasma.

Elle est basée sur le principe de bombardement du substrat par du plasma, afin d'en retirer une ou plusieurs couches de matériaux.

Le substrat (en partie protégée) est placé dans une chambre à vide. Cette chambre est équipée par deux électrodes horizontales et parallèles. L'électrode inférieure est utilisée en tant que plateau pour le substrat.

Une fois que le vide dans la chambre est fait, on introduit un gaz (dioxygène ou argon), puis on applique un fort champ électrique (une centaine ou plus de Watt/mètre) en radiofréquence à l'électrode inférieure, pour générer dans la chambre un plasma, c'est-à-dire un gaz en partie ionisée. Le substrat subit alors un bombardement d'ions qui va désagréger celui-ci.

Ce type de gravure est anisotrope, ce qui permet d'obtenir des zones gravées verticales et rectilignes (figure 1.19).

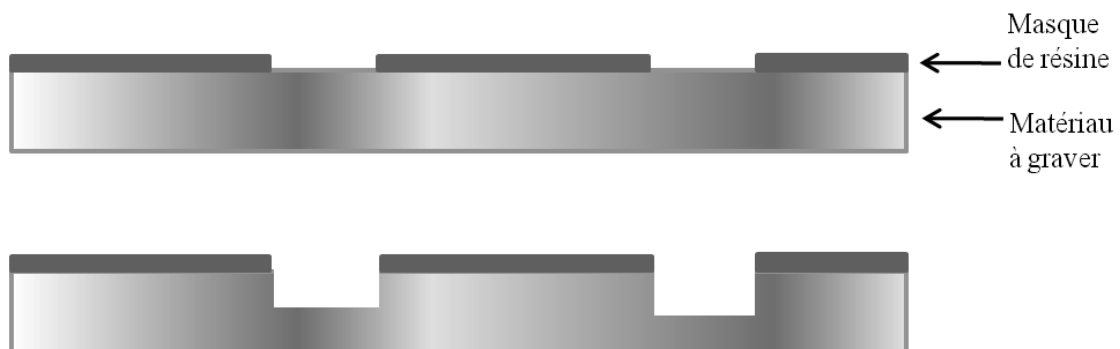


FIGURE 1.19 – Gravure sèche (flancs rectilignes et verticaux).

## 2. Gravure ionique réactive ou RIE

C'est une technique dérivée de la gravure au plasma. En fait c'est une technique de gravure physique mais couplée à la gravure chimique sèche. La gravure ionique réactive est un procédé de gravure anisotrope utilisant un ou plusieurs gaz ionisés sous forme d'un plasma. Dans une chambre à vide équipée de deux électrodes, on injecte un gaz qui sera ionisé, bombardant la surface du substrat. A ce gaz relativement inerte chimiquement, on ajoute un gaz fortement réactif comme l'héxafluorure de soufre  $SF_6$  ou le tétrafluorure de carbone  $CF_4$ . La gravure provient de la combinaison d'une attaque chimique par les espèces réactives et d'une pulvérisation physique liée au bombardement ionique. Les composantes physiques et chimiques se complètent : le bombardement améliore la partie chimique, en favorisant l'absorption des réactifs ou la désorption des espèces [86, 87].

Cette technique ajoute ainsi les avantages de la gravure physique (anisotropie) et de la gravure chimique (taux de gravure plus élevé que la gravure au plasma). En effet, le taux de gravure par la RIE est de l'ordre de 100 nm/min supérieur à celui par la gravure au plasma 10 nm/min, mais il reste toujours faible.

## 3. Gravure ionique réactive avec action d'un inhibiteur ou DRIE

Cette technique est dérivée de la technique de gravure précédente (RIE). Elle consiste à changer le mode de fonctionnement de cette dernière en injectant un second gaz dans la chambre de réaction. Le rôle de ce gaz est de déposer un film inhibiteur de polymère dans les motifs créés. Le polymère ne reste que sur les flancs des motifs et va donc les protéger lors de la gravure. Ce mode de gravure accentue l'effet d'anisotropie, et conduit à des taux de gravure beaucoup plus grands que ceux obtenus par la RIE, arrivant jusqu'au 10  $\mu\text{m}/\text{min}$ .

La gravure DRIE a été utilisée lors de la gravure de nos canaux microfluidiques. Nous détaillons son principe dans le chapitre 2.

### 1.5.3.3/ SOUDURE ANODIQUE

**Introduction** La soudure anodique est un procédé d'assemblage verre-silicium. Cet assemblage est généralement utilisé dans la fabrication des microsystèmes électromécaniques MEMS, ou des microsystèmes opto-électro-mécaniques MOEMS, comme des capteurs inertiels, des capteurs de pression, des systèmes microfluidiques, et des systèmes optiques [88, 89].

La soudure anodique est effectuée à des températures autour de 350 °C pour avoir une bonne qualité de collage. Une température basse, conduisant à une faible force de collage, se traduit par une mauvaise soudure et une apparition des bulles et des cavités à l'interface (seulement quelques études dans la littérature montrent la réussite à faible température de soudure anodique avec adhérence élevée et sans bulles d'interface). Une tension supérieure à 600 V, pendant le collage, est aussi nécessaire [90].

**Étapes de la soudure anodique** La soudure anodique comporte quatre étapes principales :

#### 1. Nettoyage de la surface des wafers :

La surface des wafers doit être extrêmement propre, pour éviter toute sorte de contamination, conduisant à des mauvais collages des matériaux verre-silicium.

## 2. Mise en contact :

Dans l'appareil utilisé pour réaliser la soudure anodique, on trouve deux plaques, une plaque inférieure jouant le rôle à la fois d'une anode et d'une plaque chauffante, et une plaque supérieure jouant le rôle d'une cathode. Ces deux plaques sont liées à une source de tension électrique. Les deux wafers à souder vont être déposés entre ces deux plaques. Le silicium est placé sur l'anode, et le verre est mis en contact d'une part avec le silicium et d'autre part avec la cathode (figure 1.20).

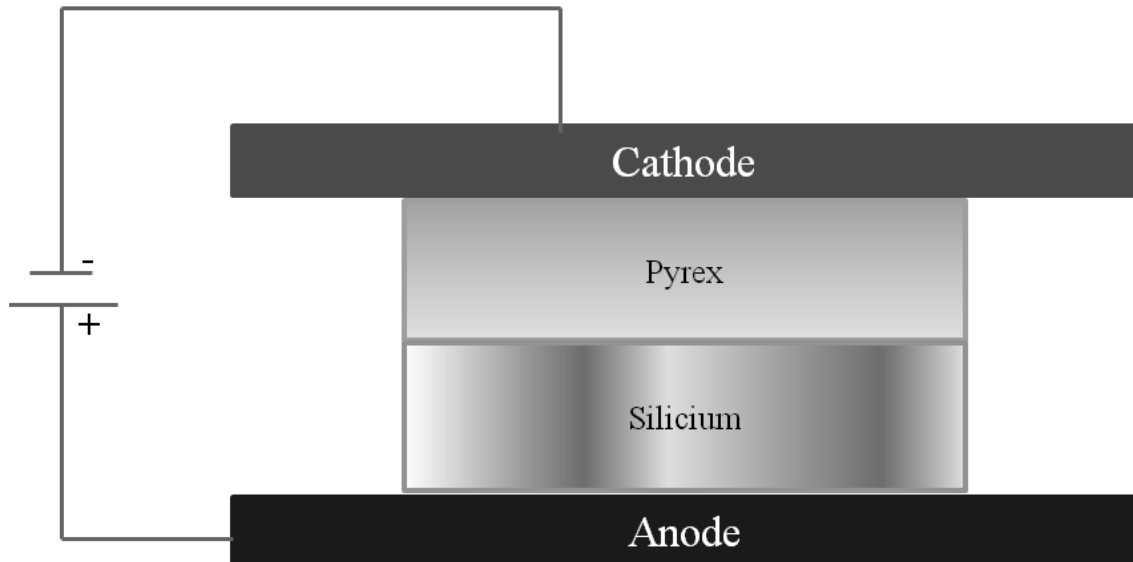


FIGURE 1.20 – Schéma du principe de la soudure anodique entre le silicium et le pyrex (Température = 350 °C, Tension > 600 V).

## 3. Réalisation de la soudure par des forces électrostatiques :

Après la mise en contact des deux wafers à souder et des deux électrodes, une tension électrique est appliquée, couplée à la température nécessaire pour la soudure (par l'intermédiaire de la plaque chauffante), permettent la conduction électrique du verre et donc la génération des ions positifs  $\text{Na}^+$  qui vont migrer vers la cathode. Les anions restant dans le verre, proche du silicium, forment un condensateur plan polarisé par la haute tension. Une baisse de tension apparaît à l'interface silicium-verre, produisant une forte attraction de la surface des deux matériaux résultante d'une force électrostatique. Des liaisons siloxanes se forment à l'interface entre les deux matériaux permettant de les souder [91, 92] (figure 1.21).

Deux approches permettent d'expliquer l'apparition des liaisons siloxanes permettant de souder les wafers de silicium et du verre :

- Première approche : les anions  $\text{O}^-$  et  $\text{OH}^-$  situés dans la zone appauvrie en sodium, proches de l'interface avec le silicium, peuvent migrer dans la direction de l'anode et arriver jusqu'à la surface du verre. Ces anions oxydent la surface du silicium par l'intermédiaire des forces électrostatiques et créent des liaisons siloxanes.
- Deuxième approche : la décomposition des molécules d'eau présentes entre le silicium et le verre, conduit à la formation des anions  $\text{OH}^-$  qui vont oxyder la surface du silicium, et former des liaisons siloxanes par l'intermédiaire des forces électrostatiques. Ces deux approches suivent le même principe de formation des liaisons siloxanes, mais elles se différencient par l'origine des anions  $\text{OH}^-$ .

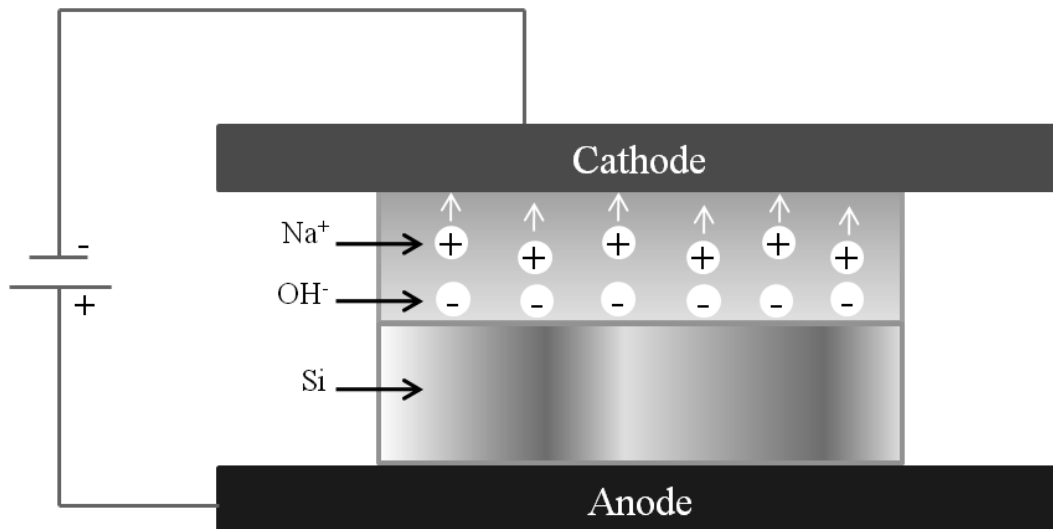


FIGURE 1.21 – Vue schématique de la migration des ions au cours de la soudure anodique.

#### 4. Refroidissement du dispositif :

Après le processus de collage, un refroidissement pendant quelques heures aura lieu. Ceci peut être pris en charge par la purge d'un gaz inerte (hélium). Le temps de refroidissement dépend de la différence des coefficients de dilatation entre les matériaux collés. Plus cette différence est grande, plus le temps de refroidissement nécessaire est lent.

**Coefficients de dilatation thermique silicium/verre** Les coefficients de dilatation thermique du verre et du silicium sont différents, ce qui cause des problèmes au niveau de la soudure anodique, surtout des perturbations au niveau des matériaux de collage. L'utilisation des verres contenant du sodium, par exemple le borofloat ou pyrex (verre 7740), permet d'éviter ce décalage [91].

Le coefficient de dilatation thermique (CTE) du silicium est constant dans la gamme de température de 0 à 450 °C, alors que celui du Pyrex 7740 varie en fonction de la température (figure 1.22) [92].

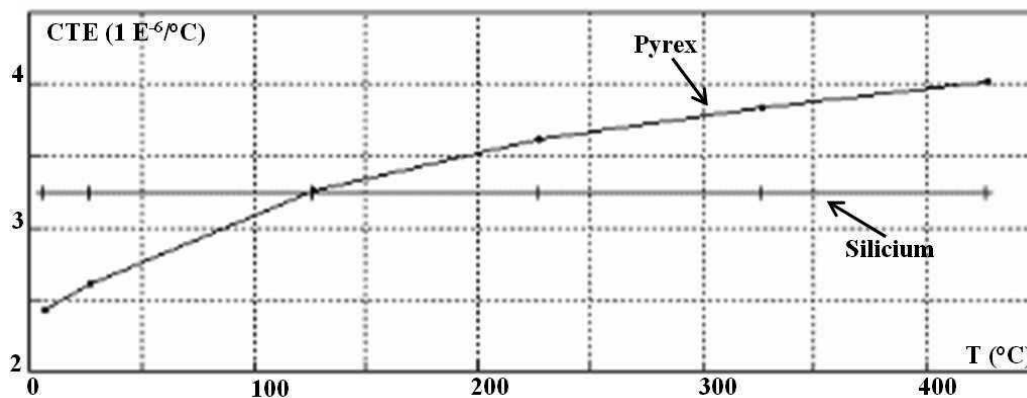


FIGURE 1.22 – Coefficient de dilatation thermique du silicium et du pyrex en fonction de la température [92].



La température de soudure optimale est à environ 300 °C. Si le collage est effectué à cette température, la structure ne présente pratiquement aucune contrainte à la température ambiante, car la tension qui se développe dans le silicium à des températures élevées (supérieures à 150 °C) sera compensée par la compression qui se développe à des températures plus basses (plus petite que 130 °C).

En pratique, il y aura toujours une certaine contrainte dans la structure, même si elle a été soudée à la température optimale, et cela est dû à la variation du coefficient de dilatation thermique du pyrex. Si la température ambiante change, une contrainte supplémentaire peut se développer dans l'appareil. Cela peut être une tension ou une compression en fonction du signe de la variation de température. La compression est dangereuse parce qu'elle pourrait provoquer le flambage de la structure. La tension est également mauvaise, mais n'est pas aussi dangereuse que la compression. Par conséquent, il est recommandé de faire la soudure à une température plus élevée (320 à 350 °C), afin de s'assurer que pendant la soudure seule la tension peut se développer [92].

## 1.6/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'état de l'art de la génération de gouttelettes dans la géométrie cible qui est la jonction en T.

Le choix de cette géométrie est basé sur le fait que l'évolution de la taille des gouttelettes/bulles est directement liée à la géométrie des microcanaux.

Dans cette configuration, nous avons abordé les différents régimes de génération ainsi que les différents paramètres permettant de contrôler leur taille. L'importance donnée au contrôle de la taille et à la génération de gouttelettes monodispersées vient du fait qu'elles sont des paramètres essentiels pour des nombreuses applications en particulier dans les domaines de la photonique et de l'acoustique.

Enfin, les différents matériaux utilisés pour la fabrication des canaux microfluidiques ont été aussi discutés afin de choisir les matériaux convenables pour les applications souhaitées.

La table 1.3 résume les principales caractéristiques des trois matériaux les plus utilisés pour la fabrication des microcanaux fluidiques.

| Matériaux | Hydrophobicité | Résistance aux solvants | Résistance à la pression | Perméabilité | Coût   |
|-----------|----------------|-------------------------|--------------------------|--------------|--------|
| PDMS      | Hydrophobe     | Faible                  | Faible                   | Oui          | Faible |
| Verre     | Hydrophile     | Forte                   | Forte                    | Non          | Moyen  |
| Silicium  | Hydrophile     | Forte                   | Forte                    | Non          | Élevé  |

TABLE 1.3 – Comparaison de certaines caractéristiques des trois principaux matériaux utilisés pour la microfabrication des canaux fluidiques.

Ainsi, pour générer des gouttelettes d'huile dans l'eau, nous allons utiliser la technologie silicium-verre, alors que pour générer des gouttelettes d'eau dans l'huile, nous allons utiliser la technologie polymère.

Il faut noter que les matériaux silicium-verre supportent des pressions élevées (table 1.3), donc permettent la génération de gouttelettes de très petite taille. Ces avantages nous ont conduit à choisir ces matériaux (à caractère hydrophile) pour fabriquer nos dispositifs

microfluidiques dédiés à la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau ou de bulles d'air dans l'eau.

De plus, l'étude de la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau demeure beaucoup moins décrite dans la littérature et pourrait encore révéler de nouvelles voies pour la microfluidique diphasique.

Les dispositifs fabriqués en matériau polymère ne sont réalisés que pour avoir une référence par rapport à la littérature puisque depuis ces dernières années, ces matériaux sont largement utilisés dans la fabrication des microcanaux fluidiques vu leur bas coût (table 1.3).

# DISPOSITIFS MICROFLUIDIQUES POUR LA GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES

## 2.1/ INTRODUCTION

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que la technologie silicium-verre est la plus adaptée pour faciliter la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau ou de bulles d'air dans l'eau alors que les matériaux polymères (PDMS ou autres) sont plutôt adaptés à la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile.

Dans ce chapitre nous présentons la fabrication des dispositifs microfluidiques en silicium-verre et en PDMS, ainsi que la mise au point des connecteurs utilisés pour faire entrer les fluides dans les microcanaux.

Avant de détailler la réalisation de ces systèmes microfluidiques, nous présentons les liquides utilisés pour générer des gouttelettes.

## 2.2/ FLUIDES

Dans le but de générer des gouttelettes, deux liquides ont été utilisés :

- Huile de silicone dow corning 704 dont la formule chimique est illustrée dans la figure 2.1. En effet, les huiles de silicone sont fréquemment utilisées dans la génération de gouttelettes microfluidiques [29, 61, 93, 94, 95], raison pour laquelle nous avons choisi cette famille des huiles. Mais, à la différence des autres huiles de silicone, le dow corning 704 est une huile ultra pure et présente des propriétés physiques inhabituelles intéressantes à exploiter (table 2.1).

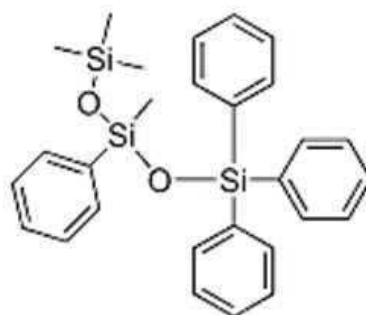


FIGURE 2.1 – Formule chimique de Dow corning 704.

- Eau déionisée colorée en bleu par un colorant alimentaire, pour avoir un bon contraste lors de la mesure de la taille des gouttelettes.

| Liquides                 | $\rho$<br>(Kg/m <sup>3</sup> ) | $\nu$<br>(mm <sup>2</sup> /s) | $\sigma$ (Liquide/Air)<br>(mN/m) | $\sigma$ (Eau/Huile)<br>(mN/m) |
|--------------------------|--------------------------------|-------------------------------|----------------------------------|--------------------------------|
| Huile dow<br>corning 704 | 1070                           | 38                            | 37                               | 100                            |
| Eau déionisée            | 1000                           | $\approx 1$                   | 72                               | 100                            |

TABLE 2.1 – Propriétés physiques des liquides mis en jeu, avec  $\rho$  la masse volumique,  $\nu$  la viscosité cinématique et  $\sigma$  la tension de surface ou la tension interfaciale.

Les propriétés physiques de dow corning 704, en particulier la densité et la viscosité ont été tirées depuis le site de l'industrie de production. Alors que la tension interfaciale eau/huile et les tensions de surface ont été mesurées en utilisant un tensiomètre KRUSS.

Avant de détailler les mesures réalisées, nous allons expliquer les principes de mesure de la tension de surface ou la tension interfaciale par le tensiomètre KRUSS, ainsi que les méthodes utilisées.

## 2.3/ MESURE DE LA TENSION DE SURFACE ET DE LA TENSION INTERFACIALE

### 2.3.1/ PRINCIPE DE MESURE

La tension de surface ou la tension interfaciale est définie comme étant le travail nécessaire pour changer la forme d'une surface ou d'une interface dont la formation est liée à la présence des interactions entre les molécules d'un liquide et d'un gaz ou des interactions entre deux liquides, respectivement.

La tension de surface ou la tension interfaciale est mesurée en utilisant une sonde (un anneau ou une lame). Une sonde en platine est utilisée pour assurer un mouillage parfait des liquides mis en jeu durant la mesure. Pour amener le liquide en contact avec la sonde suspendue à une balance, un porte échantillon mobile est utilisé. Dès que le liquide touche la sonde, une force est appliquée sur la balance. Cette force est à l'origine du calcul de la tension de surface ou de la tension interfaciale.

### 2.3.2/ MÉTHODES DE MESURE

#### 2.3.2.1/ MÉTHODE DE L'ANNEAU

Dans un premier temps, le porte échantillon est déplacé vers l'anneau pour avoir un contact entre cette dernière et la surface du liquide. Puis l'échantillon est déplacé dans le sens contraire conduisant ainsi à un étirement d'un film de liquide au dessous de la sonde. La force résultante de l'étirement est enregistrée par la balance. Lorsque l'angle de contact est égal à 0, la force est maximale et le système passe par un seuil.

Cette force maximale est utilisée pour calculer la tension de surface ou la tension interfaciale  $\sigma$  selon l'équation :

$$\sigma = \frac{F_{max} - F_V}{L \cos \theta} \quad (2.1)$$

avec  $F_{max}$  la force maximale,  $F_v$  le poids du volume de liquide soulevé,  $L$  le périmètre de mouillage et  $\theta$  l'angle de contact.

### 2.3.2.2/ MÉTHODE DE LA LAME

Le liquide est amené vers la lame de platine pour avoir un contact entre la surface de ce liquide et la sonde. La force maximale est exercée directement sur la balance raison pour laquelle on n'est plus obligé de faire déplacer l'échantillon lors de la mesure. La tension de surface ou la tension interfaciale est calculée en utilisant la formule :

$$\sigma = \frac{F}{L \cos \theta} \quad (2.2)$$

### 2.3.3/ EXPÉRIENCES

Les mesures de la tension de surface eau/air et huile/air, ainsi que la tension interfaciale eau/huile ont été réalisées à l'ENSMM. Les méthodes de lame et de l'anneau de platine ont été utilisées dans le but de vérifier chaque valeur obtenue.

Les façons de mesure de la tension de surface et de la tension interfaciale sont déjà décrites ci-avant, mais dans ce qui suit, nous signalons quelques particularités liées à nos expériences :

- Deux types de porte échantillon (un récipient en verre et un récipient en plastique) ont été utilisés. Le choix de ces deux matériaux dépend essentiellement de la nature hydrophile ou hydrophobe du liquide utilisé. En effet, et dans le but d'avoir le meilleur mouillage des parois, nous avons utilisé un récipient en verre et un récipient en plastique pour mesurer respectivement les tensions de surface eau/air et huile/air.
- Lors de la mesure de la tension interfaciale dow corning 704/eau, et contrairement aux mesures habituelles, l'huile, plus dense que l'eau, est placée au dessous d'elle.

### 2.3.4/ TENSION INTERFACIALE ÉLEVÉE

La valeur de la tension interfaciale eau/dow corning 704 est une valeur inhabituelle très élevée par rapport aux valeurs des tensions interfaciales eau/huile obtenues dans la littérature [96, 65, 67, 94, 97], etc. Ainsi et dans le but de vérifier cette valeur, plusieurs mesures ont été effectuées. Les résultats étaient parfaitement similaires donnant toujours la même valeur pour la même température de mesure (20 °C).

Cela peut être expliqué par l'ultra pureté d'huile utilisée. En effet, la tension interfaciale est très sensible à la pureté des liquides. Plus ces derniers sont purs, plus la tension interfaciale est élevée [98].

En plus, il est possible théoriquement d'obtenir cette valeur. En se basant sur les travaux de Girifalco et Good [99], la tension interfaciale entre deux liquides A et B peut être donnée par l'équation :

$$\sigma_{AB} = \sigma_A + \sigma_B - 2\phi \sqrt{\sigma_A \sigma_B} \quad (2.3)$$

avec  $\phi$  un paramètre déterminé expérimentalement. Quand  $\phi$  est petit,  $\sigma_{AB} \approx \sigma_A + \sigma_B$ . Comme  $\sigma_{eau} = 72$  mN/m et  $\sigma_{huile} = 37$  mN/m, donc  $\sigma_{eau/huile}$  peut atteindre une valeur maximale de 109 mN/m.

Il faut noter qu'en parlant de  $\sigma_{eau}$  ou  $\sigma_{huile}$ , on parle respectivement des tensions de surface (eau/air) et (huile/air).

## 2.4/ CANAUX MICROFLUIDIQUES EN T-JONCTION

Afin de générer des gouttelettes microfluidiques, nous avons réalisé des dispositifs microfluidiques dont les microcanaux ont une géométrie de T-jonction (figure 2.2). Le choix de cette géométrie simple vient du fait que l'évolution de la taille des gouttelettes/bulles est directement liée à la géométrie des microcanaux de la jonction en T. Plus les microcanaux sont petits, plus la taille de la gouttelette générée est petite (discussion dans le chapitre 3).

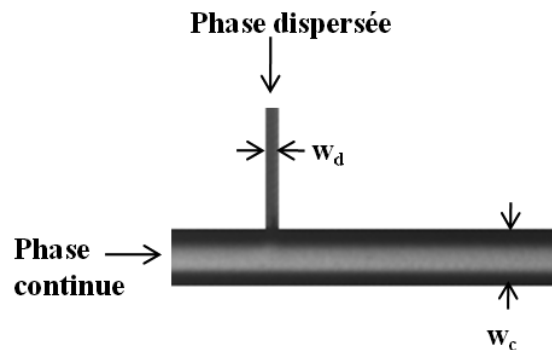


FIGURE 2.2 – Géométrie en T-jonction des microcanaux de génération.

Les dispositifs microfluidiques ont été réalisés dans la salle blanche MIMENTO de l'institut FEMTO-ST à Besançon. La fabrication de ces dispositifs nécessite un milieu extrêmement propre (salle blanche), pour éviter la contamination liée à la présence de poussières et qui peut affecter les résultats expérimentaux.

## 2.5/ DISPOSITIFS MICROFLUIDIQUES INTÉGRÉS SUR SILICIUM

Avant de commencer la fabrication des dispositifs dans la salle blanche, il faut au préalable préparer un plan précis du design que l'on souhaite graver. Ce plan dessiné à partir du logiciel Cadence va permettre la création des masques pour les étapes de photolithographie. Un exemple de plan de microcanaux fabriqués est représenté sur la figure 2.3.

Pour réaliser ces dispositifs microfluidiques, six étapes de travail en salle blanche ont été nécessaires. L'ordre des étapes a été changé pour faciliter la préparation des wafers.

– Première méthode (figure 2.4) :

1. Photolithographie face avant
2. Gravure des canaux
3. Soudure anodique
4. Photolithographie face arrière
5. Gravure pour avoir accès aux réservoirs (gravure débouchant)
6. Découpe à la scie

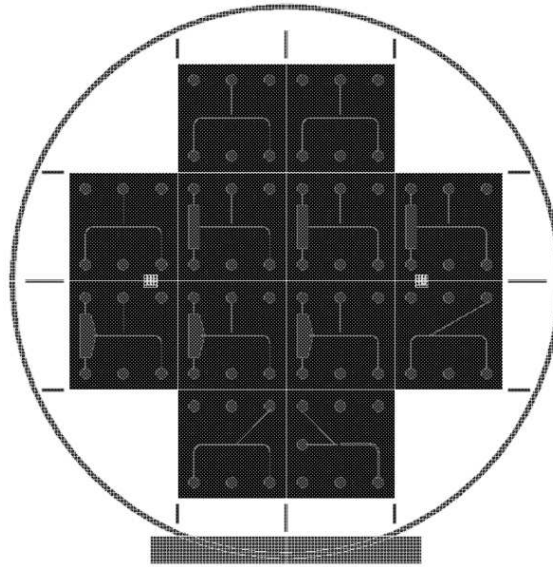


FIGURE 2.3 – Masque dessiné par Cadence montrant les différents dispositifs microfluidiques en T-jonction.

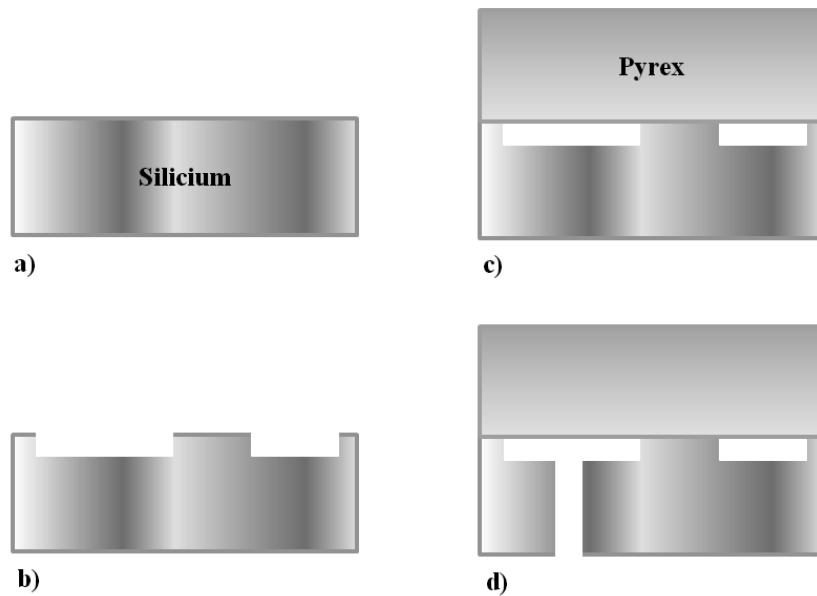


FIGURE 2.4 – Étapes de fabrication des dispositifs microfluidiques en silicium-verre (première méthode) : wafer de silicium à l'état brut (a), photolithographie et gravure de la face avant (b), collage d'un wafer de verre sur le wafer de silicium (c), photolithographie et gravure de la face arrière pour avoir accès aux réservoirs (d).

Ce procédé de fabrication a été choisi pour deux raisons principales :

- Avoir un minimum d'étapes permettant la microfabrication du système microfluidique.
- Éviter la contamination du wafer avant la soudure anodique (comme la face avant est la face la plus critique, nous avons cherché à l'avoir la plus propre possible en faisant juste une étape de photolithographie et une étape de gravure avant de fermer le système par une plaquette de verre).

Mais le collage du wafer de verre sur le wafer de silicium en troisième étape, rend difficile l'alignement du masque au cours de la quatrième étape, raison pour laquelle nous avons utilisé une autre méthode.

- Deuxième méthode (figure 2.5) :

1. Photolithographie face avant
2. Gravure des canaux
3. Photolithographie face arrière
4. Gravure pour avoir accès aux réservoirs (gravure débouchant)
5. Soudure anodique pour avoir un système fermé
6. Découpe à la scie

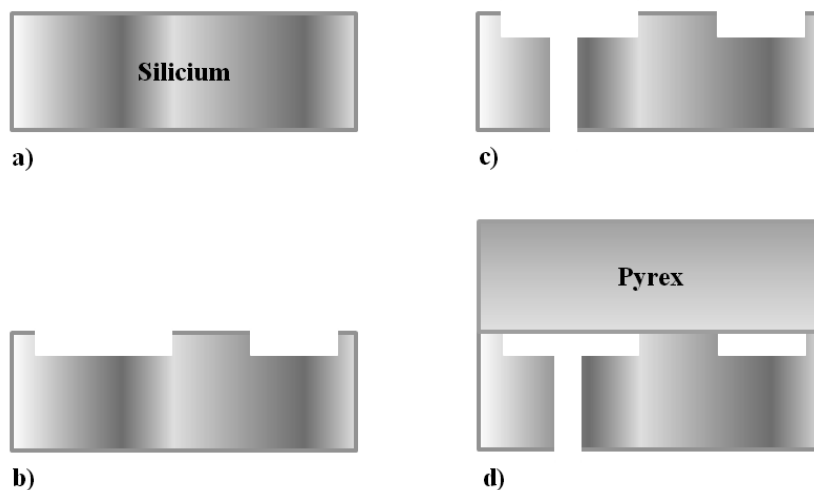


FIGURE 2.5 – Etapes de fabrication des dispositifs microfluidiques en silicium-verre (deuxième méthode) : wafer de silicium à l'état brut (a), photolithographie et gravure de la face avant (b), photolithographie et gravure de la face arrière pour avoir accès aux réservoirs (c), collage d'un wafer de verre sur le wafer de silicium (d).

Dans ce cas, une étape complémentaire est ajoutée à la quatrième étape.

Dans la chambre de gravure, le substrat est refroidi par un flux d'hélium en face arrière. Lorsque les trous débouchent et traversent la plaquette, ils permettraient à l'hélium de s'échapper dans la chambre, perturbant fortement le plasma et ainsi la gravure. Pour éviter ce phénomène nous avons placé le wafer à graver sur un wafer de protection.

Lorsque le wafer de silicium est gravé d'environ 80%, quelques gouttes d'huile de silicone sont utilisées pour assurer le collage entre les deux wafers de silicium. Ce collage n'est pas permanent et dès que le wafer de silicium est totalement gravé, on peut aisément enlever le wafer de protection.



Dans la première méthode, comme la soudure anodique se fait en troisième étape, donc avant la gravure débouchant des trous, c'est le wafer de verre qui accomplit ce rôle de protection.

Détaillons un peu ces étapes de fabrication : les wafers utilisés, les matériaux nécessaires (résine, développeur...), et les appareils (DRIE, aligneur...).

### 2.5.1/ PHOTOLITHOGRAPHIE FACE AVANT

Pour obtenir les canaux microfluidiques, des wafers de silicium polis sur les deux faces, ayant un diamètre de 100 mm et une épaisseur de 500  $\mu\text{m}$  ont été utilisés. Sur la face avant du wafer, une résine positive photosensible SPR 220 est déposée (épaisseur 2  $\mu\text{m}$ ) à l'aide d'une tournette RC8 (vitesse = 3000 tours/minute). Ensuite et pour évaporer le solvant, le wafer est chauffé à une température de 120 °C pendant 2 minutes sur une plaque chauffante. L'étape suivante consiste à aligner le photo-masque en utilisant un aligneur EVG620 pour insoler la résine par des rayonnements ultraviolets (dose = 300  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ ) qui vont modifier sa solubilité. Le photo-masque (dessiné grâce au logiciel Cadence) est un substrat de verre sur lequel les motifs sont dessinés sur une couche métallique, créant des régions transparentes et opaques. Ce masque est fabriqué à MIMENTO par un technicien expérimenté.

Après l'insolation, le wafer est mis dans une solution de MF26A (hydroxyde de tétraméthylammonium) pendant 20 secondes pour révéler les motifs. Donc le wafer sera prêt à la gravure.

### 2.5.2/ GRAVURE FACE AVANT

Pour graver les canaux microfluidiques, un appareil de gravure Alcatel A601 est utilisé (figure 2.6). La gravure utilisée est basée sur le procédé DRIE (Deep Reactive Ion Etching). Ce choix a été fait pour avoir des microcanaux rectangulaires avec des flancs verticaux. Un profilomètre alphasstep est utilisé pour contrôler et mesurer la profondeur  $h$  des microcanaux. Plusieurs dispositifs avec différentes profondeurs ( $h = 8, 14, 23, 35, 46$  et  $72 \mu\text{m}$ ) des microcanaux ont été réalisés.

– Principe de la DRIE :

Ce procédé a été mis au point par la société Robert Bosch Corporation en 1995. Il implique la répétition cyclique de deux étapes. La première étape est basée sur une gravure chimique ou ionique par l'intermédiaire d'un gaz ( $\text{SF}_6$ ), alors que la deuxième étape consiste à passiver les flancs par l'utilisation d'un polymère à l'aide d'un gaz ( $\text{C}_4\text{F}_8$ ).

Après le court plasma  $\text{SF}_6$ , le gaz  $\text{C}_4\text{F}_8$  dépose une couche de téflon sur les flancs et sur le fond de la zone précédemment gravée. L'étape de gravure suivante détruit la couche de passivation au fond du motif à l'aide du bombardement ionique. Le silicium non protégé par cette couche de passivation est alors gravé par les radicaux fluorés provenant du plasma  $\text{SF}_6$ . Puis le gaz  $\text{C}_4\text{F}_8$  est injecté de nouveau et le cycle se répète (figure 2.7).

Lors de la gravure, le substrat est à une température de 15°C.

– Types de générateurs :

En DRIE, nous trouvons deux types de générateur : générateur radiofréquence (RF) et générateur basse fréquence (LF).



FIGURE 2.6 – Appareil de gravure Alcatel disponible à la salle blanche MIMENTO de FEMTO-ST.

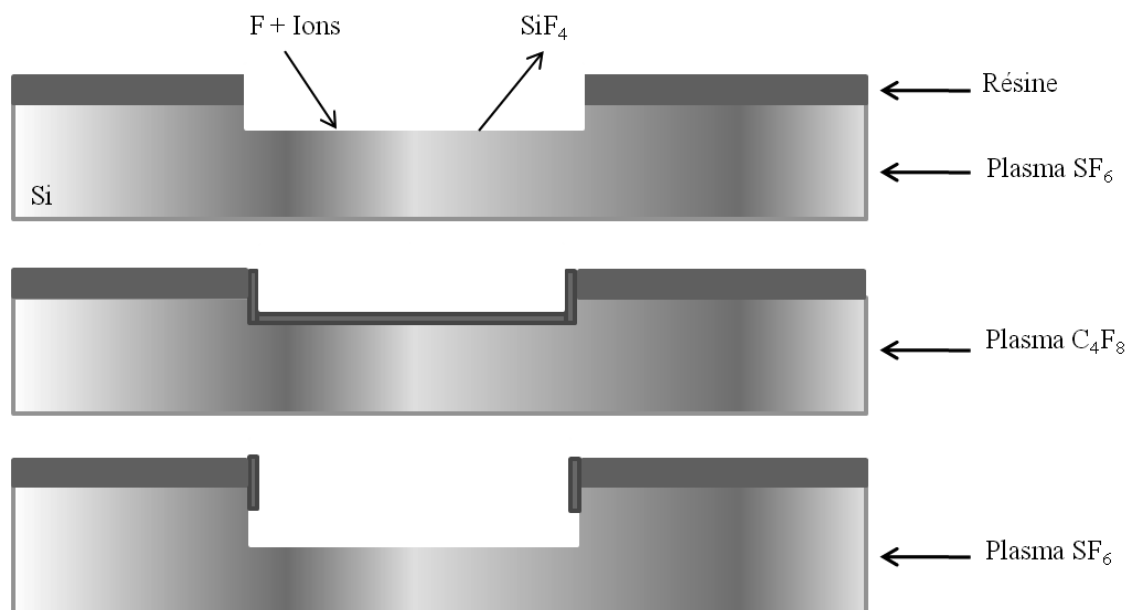


FIGURE 2.7 – Principe du procédé Bosch : répétition cyclique de deux phénomènes la gravure et la passivation.

La différence entre ces deux générateurs est principalement liée à la fréquence de fonctionnement, ainsi cette dernière est beaucoup plus faible dans le cas du générateur LF (280 kHz) que dans le cas du générateur RF (13,56 MHz). Cela engendre une différence au niveau du déplacement des ions et des électrons dans la chambre de gravure. En effet, étant donné que les ions sont plus lourds que les électrons, leurs réponses dépendent fortement du type de générateur. Ainsi le générateur LF affecte beaucoup plus des ions que le générateur RF. Ces effets peuvent causer une très faible différence de sélectivité et de taux de gravure entre ces deux types.

Pour la gravure de nos canaux microfluidiques dont la profondeur varie entre 5 et 75  $\mu\text{m}$ , nous avons utilisé dans un premier temps le générateur RF. Mais nous avons remarqué la présence d'une forte rugosité à la surface des microcanaux gravés comme le montre la figure 2.8.

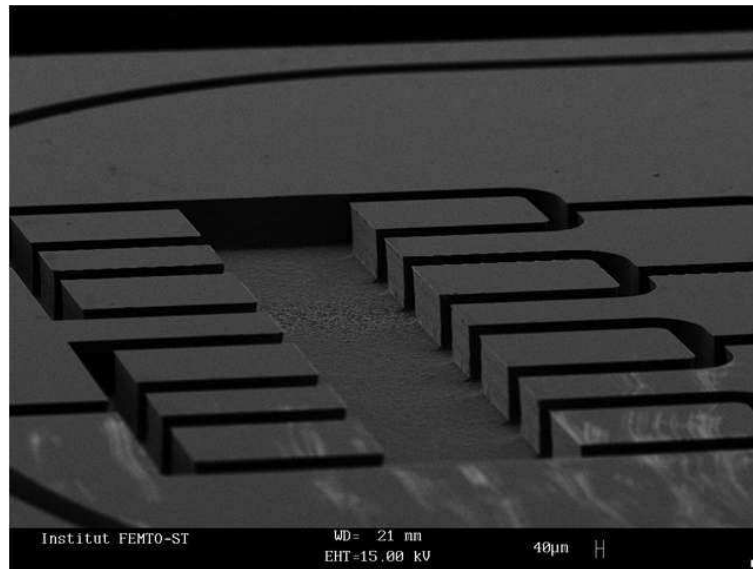


FIGURE 2.8 – Photo MEB des microcanaux dont la surface est rugueuse.

Donc pour essayer de résoudre ce problème, nous avons utilisé le générateur LF et nous avons observé une amélioration considérable au niveau de la rugosité des fonds des microcanaux comme le montre la figure 2.9.

Cette amélioration n'est pas liée au générateur lui-même, mais plutôt au mode de fonctionnement continu ou pulsé de ce dernier. En fait si le générateur fonctionne en mode continu, cela conduit à un échauffement du masque (dans notre cas la résine) ce qui se traduit ensuite par une augmentation de la rugosité des fonds. Alors que s'il fonctionne en mode pulsé (non continu), le problème d'évacuation de la chaleur ne se pose plus et le masque est totalement conservé conduisant ainsi à des surfaces lisses.

Dans l'appareil utilisé à l'institut FEMTO-ST (Alcatel A601), nous avons la possibilité de travailler en mode pulsé pour le générateur LF, alors que pour le générateur RF, seul le mode continu était disponible, raison pour laquelle nous avons obtenu une surface des microcanaux lisse dans le cas du générateur LF et rugueuse dans le cas du générateur RF.

– Paramètres influençant la gravure DRIE :

Plusieurs paramètres peuvent contrôler la qualité de la gravure réalisée par l'appareil Alcatel, par exemple :

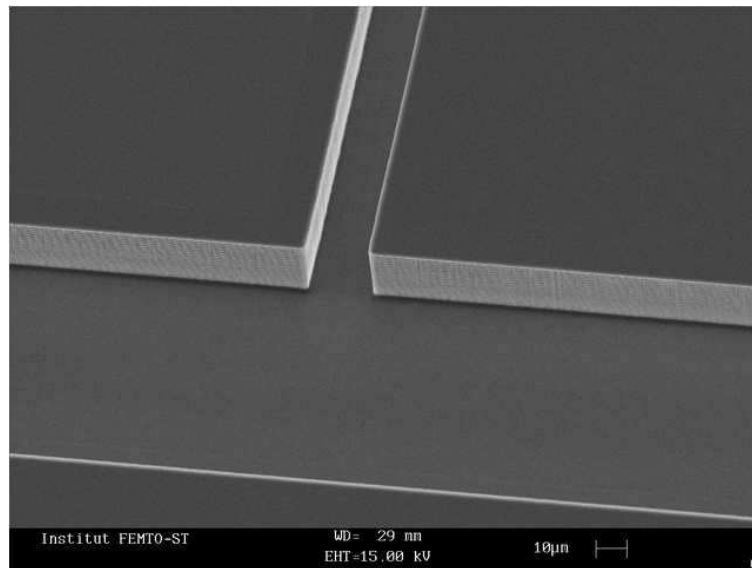


FIGURE 2.9 – Photo MEB des microcanaux dont la surface est lisse.

1. Le profil des flancs de gravure qui peut être positif ou négatif. L'angle caractérisant ce profil est calculé en mesurant la différence de largeur entre le haut et le bas d'un motif gravé. Cet angle nous renseigne sur la verticalité des parois. Un angle de  $90^\circ$  signifie une paroi verticale. En microfluidique, la réalisation des microcanaux avec des parois verticales est nécessaire afin de pouvoir contrôler précisément la géométrie et ainsi la génération de gouttelettes/bulles.
  2. Le rapport d'aspect d'une gravure qui est le rapport entre la profondeur (hauteur) et l'ouverture (largeur) du motif. Il est difficile d'obtenir un rapport d'aspect supérieur à 30, ce qui peut présenter une limitation pour certaines applications. Mais dans nos dispositifs microfluidiques, le plus grand rapport d'aspect était de l'ordre de 0,5, donc nous n'avons pas une limitation dans ce sens là.
  3. La vitesse de gravure qui dépend de la taille des motifs à graver. Dans nos cas, la vitesse de la gravure a varié entre 5 et 10  $\mu\text{m}/\text{min}$ .
  4. L'uniformité de la gravure sur l'ensemble du substrat qui dépend de plusieurs paramètres, entre autres on peut citer :
    - (a) L'uniformité du plasma donc l'uniformité de la densité des ions,
    - (b) La température du substrat qui influe sur la composante chimique du procédé et,
    - (c) La répartition des motifs sur le wafer. Les motifs au centre du wafer sont gravés avec une vitesse plus grande que ceux présents aux bords. Cela présente une limitation au niveau de la façon dont il faut disposer les différents dispositifs dans le wafer et laisse des zones non exploitables (quelques  $\mu\text{m}$  à partir des bords de wafer).
- Défauts rencontrés lors de la gravure par le DRIE
- Plusieurs défauts peuvent apparaître lors de la gravure par le DRIE, on peut citer :
1. La sous-gravure : perte de côte au niveau du premier cycle de gravure. Si on commence la gravure par un cycle  $\text{C}_4\text{F}_8$ , on peut réduire d'une manière significative ce défaut (figure 2.10).

2. La verticalité : le défaut angulaire augmente avec la largeur du trait de gravure sous le masque de résine. L'augmentation de la pression lors du cycle SF<sub>6</sub>, peut réduire ce défaut.
3. Le scalloping : c'est la rugosité des flancs de gravure (figure 2.11). Une passivation plus importante peut réduire ce défaut. Cette rugosité apparait toujours lors de la réalisation des microcanaux pour les systèmes microfluidiques, mais l'idée sera de minimiser au maximum ce défaut d'une façon à réduire son effet sur la génération de gouttelettes.

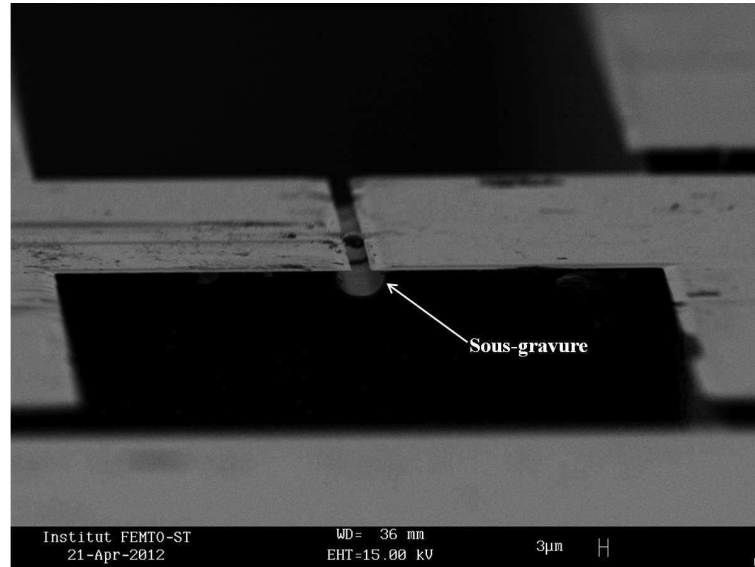


FIGURE 2.10 – Sous-gravure dans les microcanaux fluidiques.

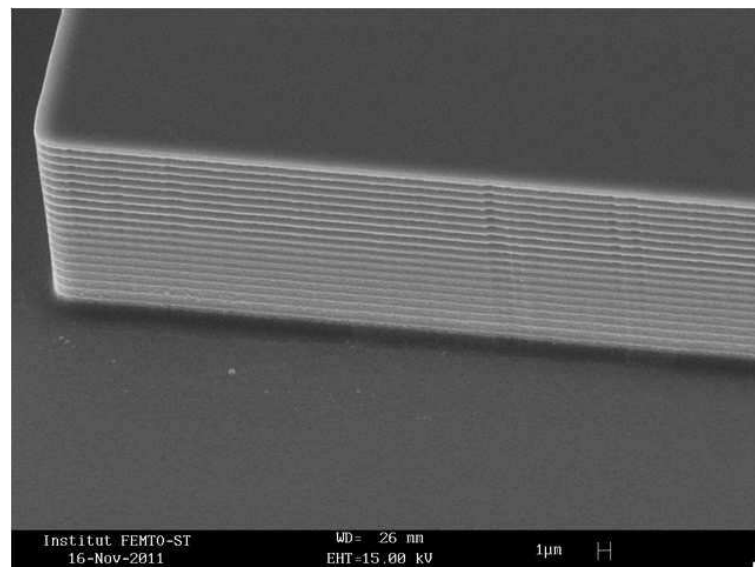


FIGURE 2.11 – Rugosité des flancs de gravure.

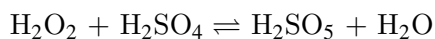
4. Le black silicon : c'est une microstructure qui ralentit la gravure relative due à un micro-masquage ou à un appauvrissement en espèces chimiques pendant la phase

de gravure. L'augmentation de la composante physique de la gravure (tension de bias), peut réduire ce phénomène.

5. Le microloading : la répartition des motifs (dessin sur le masque), peut engendrer des non-uniformités de gravure. La vitesse de la gravure n'est pas uniforme dans tout le wafer, ce qui conduit à l'apparition des zones plus gravées que d'autres. Pour diminuer ce phénomène, nous évitons de placer des motifs près des bords.

### 2.5.3/ PHOTOLITHOGRAPHIE FACE ARRIÈRE

Lorsque la gravure des microcanaux fluidiques est faite, le wafer est nettoyé à l'acétone et à l'éthanol pour enlever la résine SPR220. Si des traces de résines (figure 2.12) ou d'autres résidus comme les résidus des métaux ou les résidus organiques, etc restent présents, un nettoyage plus agressif sera nécessaire, dans ce cas le piranha (un mélange d'eau oxygénée et d'acide sulfurique) est utilisé, la réaction chimique qui aura lieu est donnée par :



Dans un bécher, nous versons 100 mL d'acide sulfurique  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , puis nous en mettons le wafer à nettoyer, et enfin nous versons lentement 25 mL d'eau oxygénée  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Le mélange est mis sous faible agitation pendant 3 minutes. La réaction est exothermique et conduit à la formation de l'acide peroxymonosulfurique  $\text{H}_2\text{SO}_5$  qui est un oxydant fort capable d'enlever les résidus organiques.

Après ce nettoyage, le wafer sera prêt pour la photolithographie face arrière.

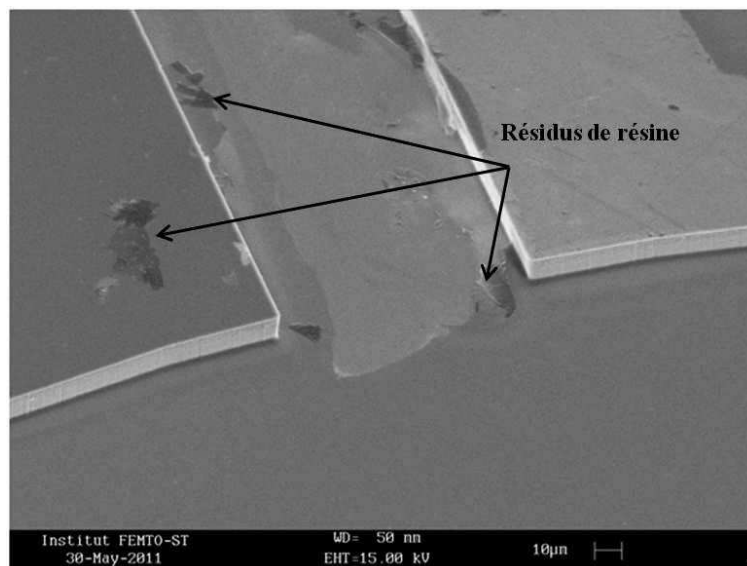


FIGURE 2.12 – Photo MEB d'un wafer de silicium montrant la présence des résidus de résine.

Cette étape est semblable à la première étape (photolithographie face avant), sauf que les conditions expérimentales changent :

- Type de la résine : dans ce cas une résine positive photosensible AZ9260 est utilisée afin d'assurer une épaisseur de 7 µm adaptée à des gravures profondes.
- Durcissement de la résine par évaporation de solvant : se fait aussi sur une plaque chauffante à une température de 120 °C mais pendant 9 minutes.

- Dose de rayonnements ultraviolets :  $900 \text{ mJ/cm}^2$
- Développeur : le substrat est plongé dans une solution de AZ400K/eau pendant 7 minutes pour révéler les motifs. L’AZ400K est une solution à base de KOH commercialisée par Clariant. Elle permet l’obtention d’un fort contraste donc des motifs bien définis [100].

#### 2.5.4/ GRAVURE FACE ARRIÈRE

Cette étape a pour but de graver des trous sur la deuxième face du wafer pour avoir accès aux microcanaux déjà gravés lors de la deuxième étape. Les trous ont un diamètre de  $730 \mu\text{m}$  adapté au diamètre extérieur ( $d = 710 \mu\text{m}$ ) des aiguilles 22G qui serviront pour la connectique microfluidique. Cette gravure est aussi réalisée par l’appareil Alcatel et dans les mêmes conditions que la gravure face avant (gravure des microcanaux). Lorsque la gravure des trous est finie, le wafer est nettoyé de nouveau à l’acétone et à l’éthanol pour enlever la résine AZ9260. Un nettoyage supplémentaire au piranha est parfois nécessaire.

#### 2.5.5/ SOUDURE ANODIQUE

La soudure anodique est une étape obligatoire dans la fabrication de nos systèmes microfluidiques puisqu’on cherche à avoir un système fermé. En plus le système doit être aussi transparent pour permettre la visualisation des gouttelettes générées, raison pour laquelle le verre a été choisi comme deuxième substrat et non pas le silicium.

Afin de faire le collage anodique silicium-verre, une étape supplémentaire de nettoyage du wafer de silicium par le mélange sulfochromique (solution à base de dichromate de potassium  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$  et d’acide sulfurique  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) est indispensable pour éviter toute sorte de contamination, et dissoudre les matières organiques et les éléments métalliques qui peuvent rester après le nettoyage par le mélange acétone-éthanol ou par le piranha (figure 2.13).

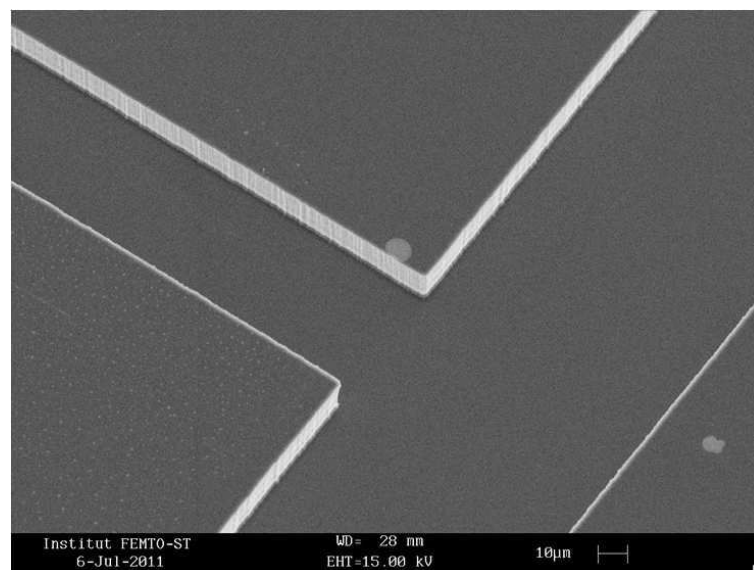


FIGURE 2.13 – Photo MEB d’un wafer de silicium à l’état propre (nettoyé par le mélange sulfochromique), convenable pour la soudure.

Un wafer de verre de 100 mm de diamètre et de 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur est utilisé. Ce wafer est aussi nettoyé par le mélange sulfochromique. La propreté des wafers silicium et verre est un des facteurs permettant d'avoir un bon collage. Après le nettoyage, les deux wafers silicium et verre sont mis en contact puis placés dans l'appareil de soudure EVG501, pour être collés (figure 2.14).



FIGURE 2.14 – Machine de wafer bonding EVG501 disponible dans la salle blanche de MIMENTO de FEMTO-ST.

Pour le collage, nous avons dû modifier le procédé standard de soudure anodique en augmentant le temps de refroidissement de deux heures à cinq heures pour éviter la cassure des wafers mais tout en utilisant la température recommandée de chauffage et qui est de 350 °C (paragraphe 1.5.3.3 du chapitre 1).

#### 2.5.6/ DÉCOUPE À LA SCIE

Les wafers peuvent être constitués de nombreux dispositifs. Pour les utiliser séparément une étape de découpe à la scie est nécessaire (figure 2.15). Pour les matériaux durs comme

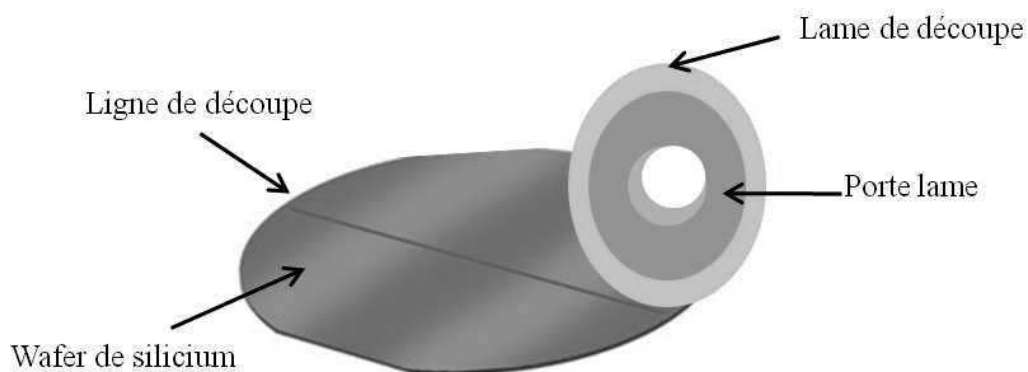


FIGURE 2.15 – Schéma représentant la découpe d'un wafer de silicium.



le verre ou le silicium, des lames diamantées sont utilisées. En fonction des propriétés du matériau, les grains de diamant auront diverses grosseurs et seront contenues dans une matrice plus ou moins dure (nickel ou résine). Durant la découpe, l'échauffement est considérable, donc un fluide de refroidissement (eau déminéralisée) est nécessaire pour évacuer la chaleur et également le matériau abrasé.

Dans notre cas, le wafer est découpé en douze dispositifs (de 2cm×2cm), numérotés de I à XII comme le montre la figure 2.16.

Des traits d'alignement sont prévus dans le wafer afin de faciliter la découpe.

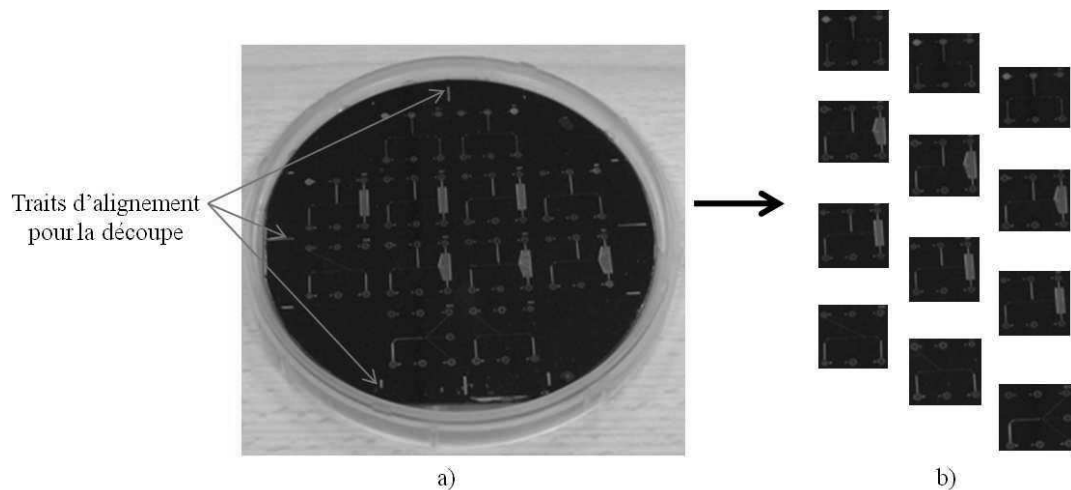


FIGURE 2.16 – Découpe du wafer à la scie : wafer à découper avec ses traits d'alignement (a) et les douze dispositifs obtenus après la découpe (b).

En raison de la différence des coefficients thermiques entre le silicium et le verre (paragraphe 1.5.3.3 du chapitre 1), et même en faisant la soudure anodique à la température recommandée c'est-à-dire à 350 °C, une courbure convexe du côté du verre apparaît (figure 2.17).

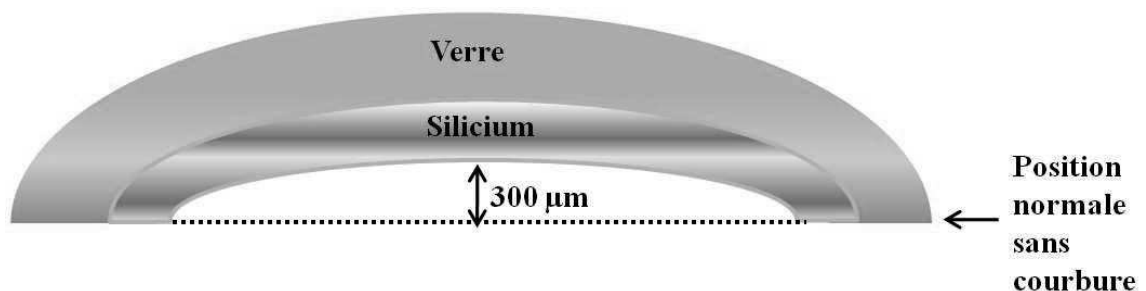


FIGURE 2.17 – courbure du wafer silicium-verre après la soudure anodique.

Cette courbure peut parfois arriver à 300 μm, cela cause des vrais dégâts lors de la découpe à la scie arrivant à la cassure totale de wafer.

Afin de les éviter, une découpe du côté du silicium peut présenter une solution acceptable. Le wafer sera maintenu par le vide avec beaucoup moins de contrainte que dans le cas d'une découpe du côté de verre.

La découpe est faite par une technicienne de la salle blanche MIMENTO de FEMTO-ST.

## 2.5.7/ CONNECTIQUE

Avant de pouvoir tester ces dispositifs microfluidiques, il faut pouvoir réaliser une connexion entre les échelles macroscopique et microscopique afin de permettre la circulation des fluides dans les microcanaux.

Pour les expériences, les fluides sont soit stockés dans des seringues en plastique ou en verre de différents volumes (1 ; 2,5 ; 3 et 5 mL), soit fournis par une pompe à pression constante. Ces dispositifs sont reliés à des tubes en FEP (éthylène propylène fluoré : un matériau à base d'hexafluoropropylène et de tétrafluoroéthylène) ayant un diamètre intérieur de 0,5 mm, qui sont à leur tour reliés à des aiguilles ayant le corps en inox et la tête en plastique. Ces dernières sont collées au dispositif microfluidique par l'intermédiaire d'une colle bicomposante de type époxy choisie d'une part pour sa viscosité importante (gel) empêchant sa pénétration dans les trous et donc le débouchage des microcanaux, et d'autre part pour son temps de durcissement. En effet, la durée de durcissement de la colle est de quelques minutes (3 à 5 minutes) ce qui permet de bien répandre la colle et d'ajuster correctement les éléments pour le collage.

La figure 2.18 illustre les connecteurs mis en oeuvre pour assurer la connexion fluidique.

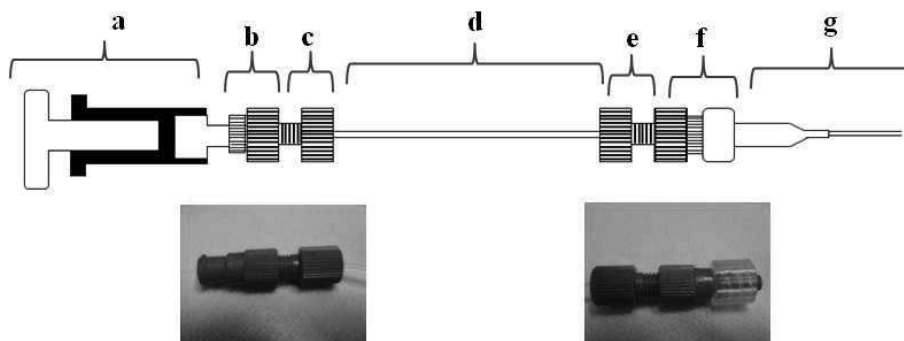


FIGURE 2.18 – Schéma des différents connecteurs utilisés avec : seringue montée sur le poussoir (a), connecteur luer femelle-femelle (b), flangeless fittings (c) et (e), tube en FEP (d), connecteur luer femelle-mâle (f), aiguille (g).

## 2.5.8/ BANC DE CARACTÉRISATION

Les dispositifs microfluidiques préparés seront ensuite testés dans une autre salle blanche de l'institut FEMTO-ST. La réalisation des expériences à une température constante ( $20 \pm 2^\circ\text{C}$ ) est primordiale puisqu'elle influe d'une façon critique sur les propriétés physiques des liquides et surtout sur leurs viscosités et sur leurs tensions interfaciales.

Et ainsi pour générer et visualiser les gouttelettes dans les dispositifs microfluidiques, deux outils expérimentaux sont nécessaires :

- Poussoir-seringue : deux poussoirs-seringues (Harvard apparatus 11 plus) ont été utilisés dans le but de contrôler les débits des fluides dans les microcanaux (figure 2.19) (annexe A).
- Microscope : un microscope équipé avec une caméra CCD et branché à un ordinateur a été utilisé pour mesurer le diamètre  $d$  des gouttelettes générées (figure 2.19).

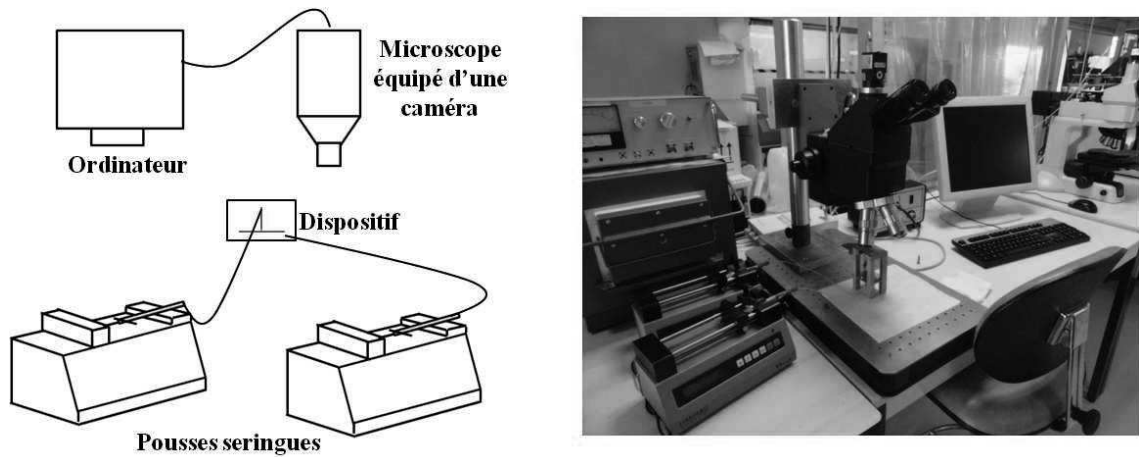


FIGURE 2.19 – Schéma du montage expérimental.

Des dizaines des valeurs sont prises afin de prendre une valeur moyenne représentant la taille effective de la gouttelette. Les mesures ont montré que la taille des gouttelettes est plutôt monodisperse avec un taux de polydispersité qui ne dépasse pas les 2 % (discussion dans le paragraphe 3.5 du chapitre 3).

Un support adapté à la taille des dispositifs a été fabriqué par un technicien de l'institut FEMTO-ST (figure 2.20).

Ce support a deux rôles principaux :

- Maintenir le dispositif microfluidique dans une position fixe, permettant ainsi une manipulation plus aisée.
- Assurer la hauteur nécessaire à l'utilisation du microscope utilisé pour mesurer le diamètre  $d$  de la gouttelette formée dans les dispositifs microfluidiques.

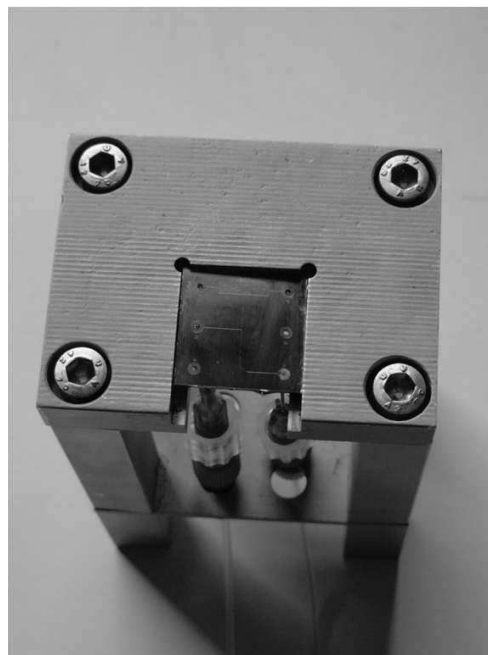


FIGURE 2.20 – Schéma du support utilisé.

Un exemple de génération de gouttelettes dans les microcanaux fluidiques est présenté dans la figure 2.21.

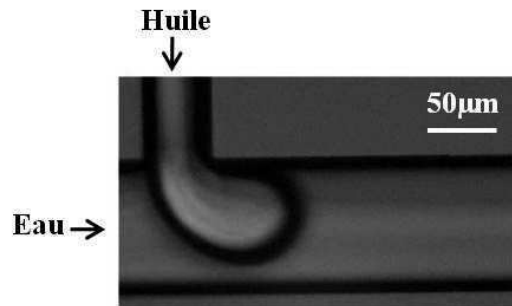


FIGURE 2.21 – Génération de gouttelettes dans les canaux microfluidiques.

### 2.5.9/ RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

L'utilisation de ces dispositifs nous a permis de générer des gouttelettes de diamètre variable allant de 196 à 25  $\mu\text{m}$  obtenues avec les profondeurs 23, 35, 46 et 72  $\mu\text{m}$  (nous discutons le procédé de génération de ces gouttelettes dans les chapitres suivants).

Par contre, avec des microcanaux de profondeur 8  $\mu\text{m}$ , nous n'avons pas pu générer de gouttelettes puisqu'il y avait des fuites au niveau des aiguilles. Dans un premier temps et dans le but de surmonter ce problème, les aiguilles utilisées (tête en plastique) sont remplacées par d'autres types d'aiguilles ayant le corps et la tête en inox (figure 2.22), ce qui a permis l'arrêt des fuites au niveau des aiguilles mais un décollement de la colle au niveau du joint a été observé. Pour cela, nous avons essayé de réaliser un joint en polymère (PDMS) qui sera déposé entre l'aiguille et le dispositif microfluidique dans le but de renforcer la liaison et empêcher le décollement, mais le polymère a pénétré dans les canaux microfluidiques et les a bouchés. Nous avons ensuite changé le type de colle et nous en avons utilisé une nouvelle de type cyanocrylate. Cependant son durcissement se fait par l'intermédiaire d'un durcisseur en spray qui pénètre malheureusement dans les microcanaux, conduisant à leur contamination irréversible. En fait, cette fuite est directement liée à l'augmentation de la

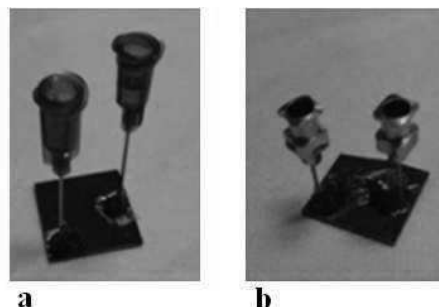


FIGURE 2.22 – Schéma des aiguilles utilisées avec : aiguilles tête plastique (a) et aiguilles tête inox (b).

pression dans les microcanaux au niveau de l'aiguille. Cette pression peut être déterminée en calculant la perte de charge  $\Delta P$  dans les microcanaux (paragraphe 1.2.3). Dans une

section rectangulaire (cas des microcanaux), la perte de charge est donné par :

$$\Delta P = \frac{32\mu\bar{v}L}{D_h^2} \quad (2.4)$$

avec  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide,  $\bar{v}$  la vitesse d'écoulement du fluide,  $L$  la longueur du microcanal et  $D_h$  le diamètre hydraulique ( $D_h = \frac{4A}{P}$ , avec  $A$  la section du microcanal et  $P$  son périmètre). Dans une section rectangulaire, la section est donnée par :  $A = h.w$  et le périmètre est :  $P = 2(h + w)$ .

Donc quand la profondeur  $h$  ou la largeur  $w$  du microcanal diminue, la section diminue conduisant ainsi à une augmentation de la perte de charge comme le montre la figure 2.23. Cette illustration de la perte de charge a été dessinée en se basant sur les propriétés

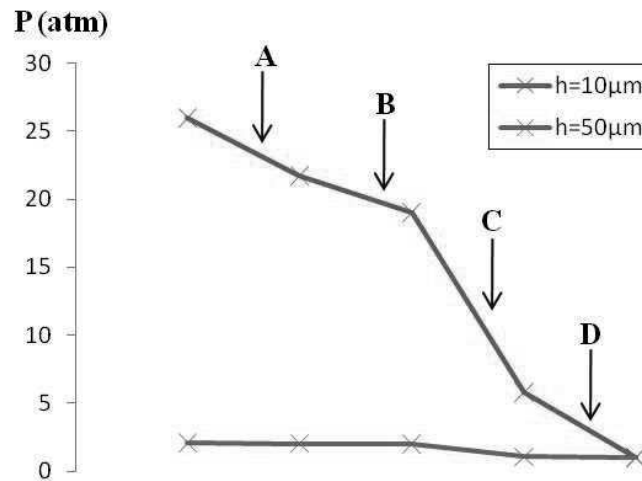


FIGURE 2.23 – Perte de charge dans les microcanaux fluidiques en fonction de leurs profondeurs  $h$ .

géométriques des microcanaux (table 2.2) utilisés dans nos dispositifs microfluidiques et en considérant que l'eau circule selon le schéma présenté par la figure 2.24. Le débit a été pris comme étant 50  $\mu\text{L}/\text{min}$ , une valeur moyenne utilisée lors de nos expériences.

| Parties | Largeur du microcanal ( $\mu\text{m}$ ) | Longueur du microcanal ( $\mu\text{m}$ ) |
|---------|---|--|
| A       | 100                                     | 5310                                     |
| B       | $w_1 = 10$ et $w_2 = 100$               | 150                                      |
| C       | 10                                      | 500                                      |
| D       | 100                                     | 6000                                     |

TABLE 2.2 – Propriétés géométriques des différentes parties des microcanaux fluidiques avec  $w_1$  et  $w_2$  étant respectivement la petite et la grande base du polygone B (figure 2.24).

Pour surmonter ces problèmes de fuites qui n'ont pas pu être résolus en changeant les techniques de connexion, il va falloir minimiser les pertes de charge dans le dispositif.

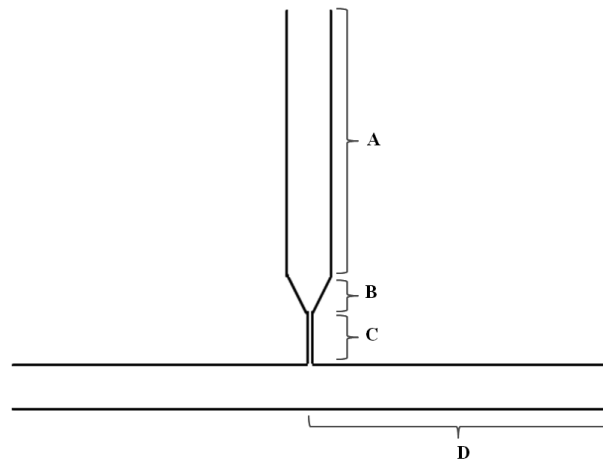


FIGURE 2.24 – Schéma montrant le chemin parcouru par l'eau.

## 2.6/ DISPOSITIFS À FAIBLE PERTE DE CHARGE

Pour minimiser les pertes de charge dans les systèmes microfluidiques et ainsi descendre davantage en échelle pour générer des gouttelettes encore plus petites ( $<25\ \mu\text{m}$ ), des nouveaux dispositifs microfluidiques ont été fabriqués.

L'idée est simple, elle consiste à réaliser des dispositifs à double profondeur c'est-à-dire des dispositifs dont la partie active (la jonction en T) est uniquement à faible dimension, alors que tout le reste du système est beaucoup plus profond (figure 2.25). Dans ce cas, nous avons diminué les longueurs des microcanaux constituant la jonction en T. Cela nous permet de diminuer la perte de charge (figure 2.26), et donc à priori de surmonter le problème des fuites. En effet, dans les nouvelles configurations, les microcanaux (C' et D') ont une profondeur de  $10\ \mu\text{m}$ , une largeur de  $10\ \mu\text{m}$  et une longueur de  $100\ \mu\text{m}$  très inférieure aux longueurs des microcanaux (C et D) dans les anciennes configurations (table 2.2).

Il faut noter que, dans ces dispositifs à faible perte de charge, des canaux de stop-colle (figure 2.25-a) ont été ajoutés afin d'éviter la pénétration de la colle dans les microcanaux fluidiques. Ces canaux vont aspirer le surplus de la colle par capillarité. En plus un rétrécissement du canal (figure 2.25-b) réservé à l'aiguille est réalisé et va jouer le rôle de la barrière empêchant ainsi l'aiguille de dépasser la longueur de ce canal.

Afin de fabriquer ces dispositifs microfluidiques à faible perte de charge, des wafers de silicium poli sur les deux faces, ayant un diamètre de  $100\ \text{mm}$  et une épaisseur de  $500\ \mu\text{m}$  ont été utilisés. La seule différence est l'utilisation des wafers oxydés qui vont jouer le rôle d'un masque lors de la gravure.

La réalisation de ces dispositifs passe par plusieurs étapes, comme le montre la figure 2.27.

### 2.6.1/ PHOTOLITHOGRAPHIE DU DISPOSITIF ENTIER

C'est la première étape du procédé. Elle consiste à imprimer le masque contenant les dispositifs entiers (parties profondes et parties non profondes). Cette étape ressemble à l'étape de photolithographie décrite au paragraphe 2.5, mais les conditions expérimentales sont différentes :

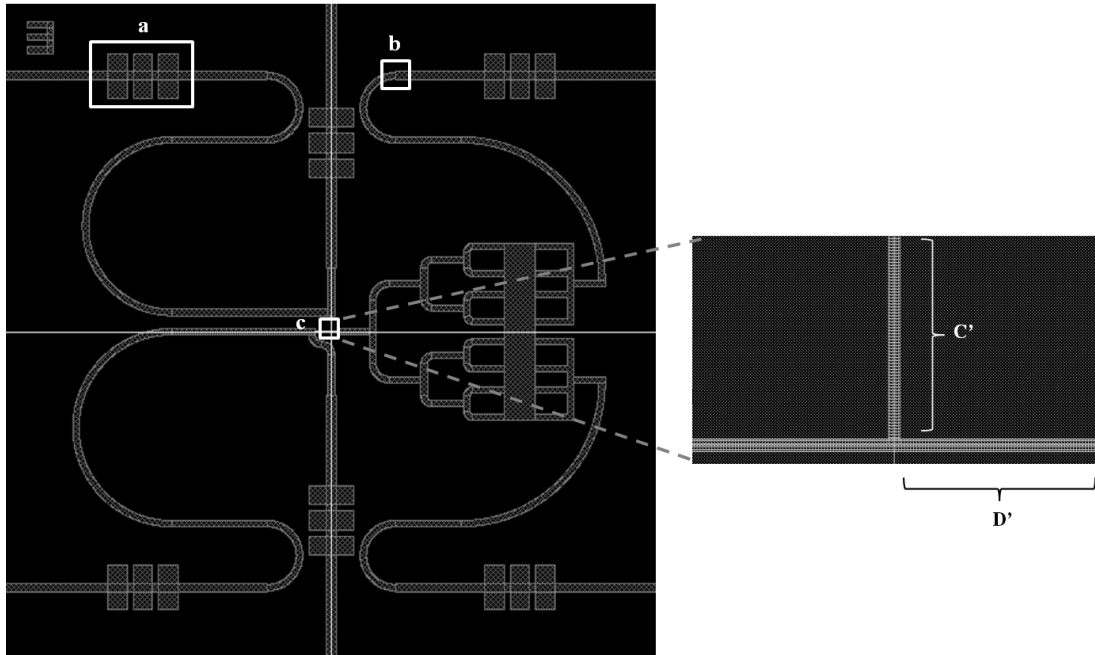


FIGURE 2.25 – Dispositif microfluidique à faible perte de charge avec : canaux de stop-colle (a), rétrécissement du canal réservé à l’aiguille (b) et jonction en T (c).

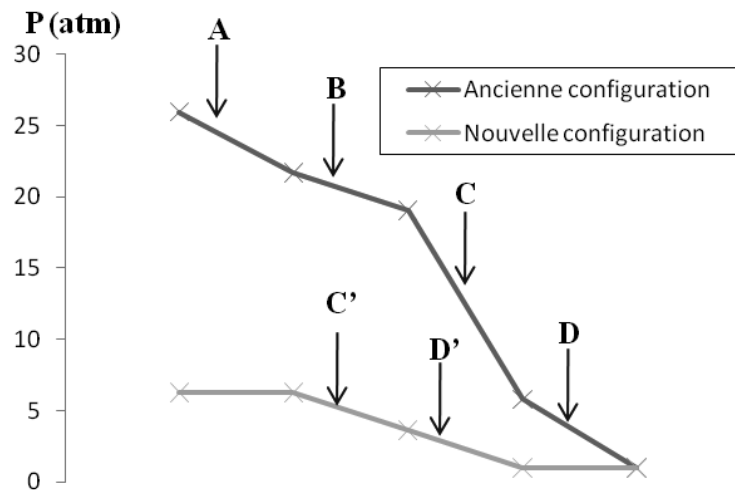


FIGURE 2.26 – Perte de charge dans les microcanaux fluidiques en fonction de leurs longueurs  $L$ , avec  $h = 10 \mu\text{m}$  dans les deux cas.

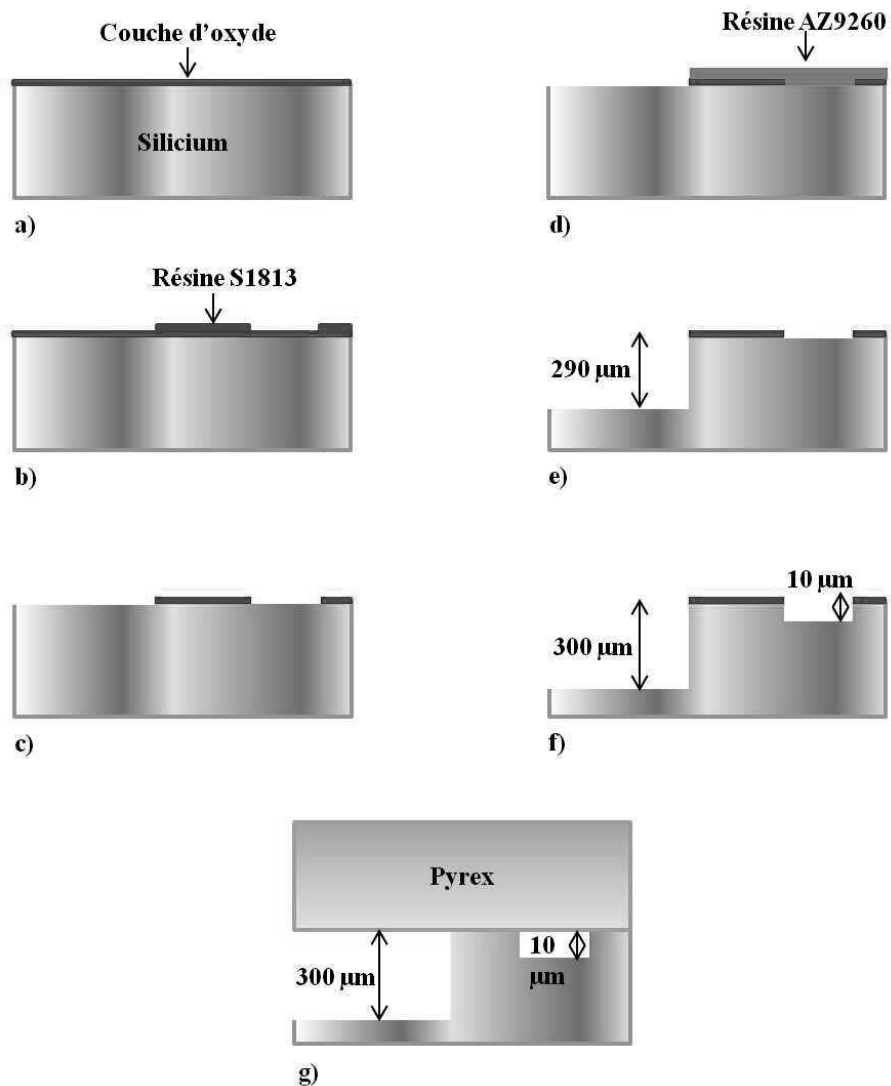


FIGURE 2.27 – Étapes de fabrication des dispositifs microfluidiques à faible perte de charge en silicium-verre avec : wafer de silicium oxydé à l'état brut (a), photolithographie du wafer entier (épaisseur de la résine S1813 =  $2\ \mu\text{m}$ ) (b), ouverture BHF à une épaisseur de  $1,2\ \mu\text{m}$  (c), photolithographie des parties profondes (épaisseur de la résine AZ9260 =  $7\ \mu\text{m}$ ) (d), gravure profonde ( $h = 290\ \mu\text{m}$ ) en utilisant la résine AZ9260 comme masque (e), gravure du wafer entier ( $h = 10\ \mu\text{m}$ ) en utilisant la couche d'oxyde comme masque (f), et collage anodique (g).



- Type de la résine : une résine positive photosensible S1813 ayant une épaisseur de 2  $\mu\text{m}$  est utilisée.
- Durcissement de la résine : se fait à une température de 120 °C, pendant 2 minutes.
- Intensité des rayonnements ultraviolets : 50 mJ/cm<sup>2</sup>
- Développeur : le substrat est plongé dans une solution de MF26A pendant 20 secondes, pour révéler les motifs.

### 2.6.2/ OUVERTURE BHF

Lors de cette étape, le wafer est mis dans une solution du BHF (acide fluorhydrique tamponé) pour enlever la couche d'oxyde ( $\text{SiO}_2$ ) dans les endroits non protégés par la résine. L'épaisseur de cette ouverture est de l'ordre de 1,2  $\mu\text{m}$ .

Dans les parties protégées par la résine, cette couche d'oxyde persiste et constitue ainsi le masque d'oxyde utilisé lors de l'étape de gravure (paragraphe 2.6.4).

Il faut noter que cette gravure chimique humide par l'acide fluorhydrique conduit généralement à une dégradation du silicium protégé par la résine (paragraphe 1.5.3.2 du chapitre 1). Mais dans nos dispositifs et vu la profondeur de la gravure qui est très faible (1,2  $\mu\text{m}$ ), ce problème n'a pas été observé.

Cette étape a été faite par un technicien expérimenté de la salle blanche MIMENTO de FEMTO-ST.

### 2.6.3/ PHOTOLITHOGRAPHIE DES PARTIES PROFONDES

Durant cette étape, seuls les dispositifs ayant les motifs profonds sont préparés pour être gravés. La résine va couvrir les parties non profondes (les microcanaux en T-jonction) pour les protéger lors de la gravure.

La résine utilisée est la AZ9260 (conditions d'expérimentation déjà décrites dans le paragraphe 2.5).

### 2.6.4/ GRAVURE DRIE

Les motifs imprimés lors de l'étape précédente sont gravés à une profondeur de 290  $\mu\text{m}$ . Cette profondeur est nécessaire afin de pouvoir utiliser les aiguilles 32G ayant un diamètre extérieur de 270  $\mu\text{m}$ .

Une fois gravé à la profondeur souhaitée, le wafer est nettoyé par l'acétone et l'éthanol puis par le piranha afin d'enlever la résine.

Ensuite une nouvelle gravure est faite en utilisant, au lieu de la résine, la couche d'oxyde  $\text{SiO}_2$  comme masque. Dans ce cas, les deux parties profondes et non profondes sont gravées à une profondeur de 10  $\mu\text{m}$ .

### 2.6.5/ SOUDURE ANODIQUE

Avant de coller le wafer de silicium au wafer du verre, nous enlevons le masque d'oxyde (en mettant le wafer dans une solution de BHF) dans le but d'avoir une surface bien propre, condition indispensable pour réaliser la soudure anodique. Les mêmes conditions

expérimentales utilisées lors de la fabrication des premiers dispositifs ont été utilisées pour le collage de ces dispositifs à faible perte de charge (paragraphe 2.5.5).

Une fois le wafer de silicium est collé au wafer de verre, les 12 dispositifs sont découpés à la scie.

### 2.6.6/ CONNECTIQUE

Les mêmes outils expérimentaux utilisés pour les premiers dispositifs sont utilisés ici, la seule différence vient du fait que le collage ne se fait plus d'une manière perpendiculaire (figure 2.22), mais dans le plan (figure 2.28). Des robinets sont aussi utilisés pour assurer le contrôle de la circulation des fluides dans le microcanaux et évacuer les bulles d'air qui peuvent bloquer cette circulation.

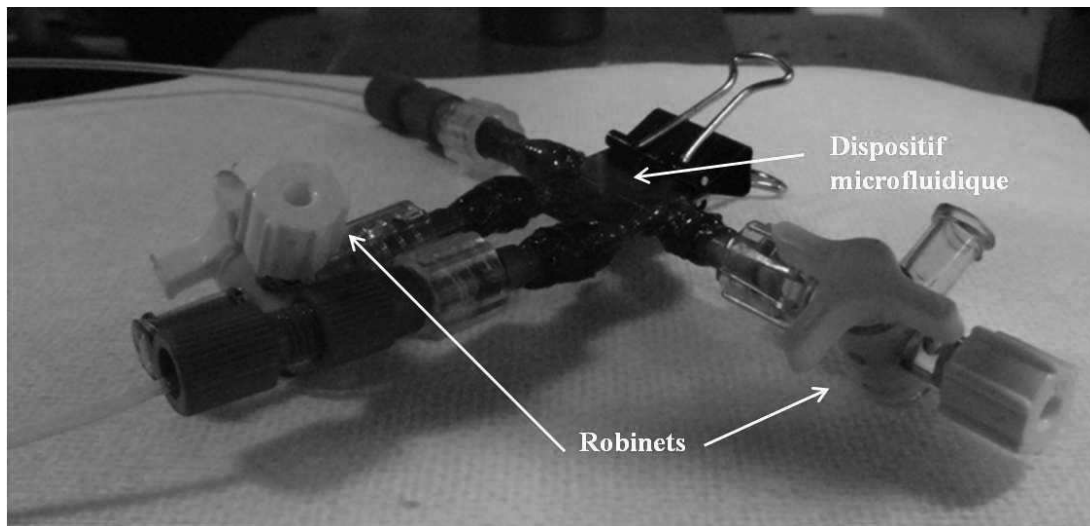


FIGURE 2.28 – Dispositif à faible perte de charge avec des aiguilles dans le plan.

### 2.6.7/ CONCLUSION

Les dispositifs à faible perte de charge ont permis de surmonter le problème des fuites et générer des gouttelettes ayant un diamètre inférieur à 25  $\mu\text{m}$  (plus petit diamètre obtenu avec les premiers types des dispositifs).

## 2.7/ DISPOSITIFS INTÉGRÉS SUR PDMS

Dans le but de comparer nos résultats expérimentaux avec la littérature, des dispositifs en PDMS ont été réalisés. En effet, depuis la découverte du PDMS [101], plusieurs auteurs [43, 102, 103], attirés par la facilité de préparation et le bas coût des matériaux polymères [104, 105] (table 1.3), les ont utilisés pour fabriquer leurs dispositifs microfluidiques dédiés à la génération de gouttelettes.

La fabrication des dispositifs microfluidiques en polydiméthylsiloxane (PDMS) (figure 2.29), se divise en deux grandes parties :

1. Préparation du moule sur un substrat en silicium
2. Préparation du PDMS

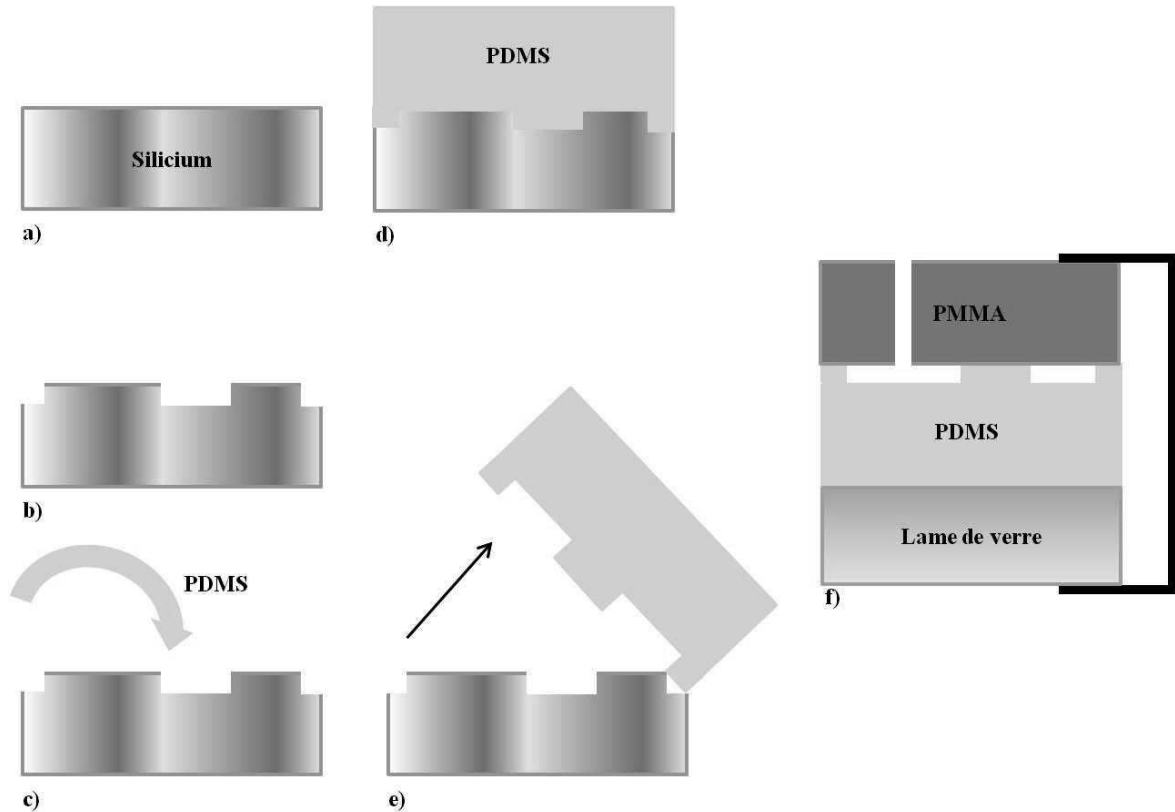


FIGURE 2.29 – Étapes de fabrication des dispositifs microfluidiques en PDMS : wafer de silicium à l'état brut (a), photolithographie et gravure du silicium (b), ajout du PDMS (c), formation du substrat en PDMS (d), démoulage du PDMS (e) et dispositif final (f).

### 2.7.1/ PHOTOLITHOGRAPHIE

La première étape de fabrication des dispositifs microfluidiques intégrés sur un polymère est la photolithographie. Elle consiste à imprimer le même masque utilisé lors de la photolithographie face avant pour les dispositifs microfluidiques intégrés sur silicium (paragraphe 2.5.1), mais à la différence l'utilisation d'une résine inversible Ti09 qui est en fait une résine positive mais cuite et exposée (aux rayonnements UV) deux fois d'une façon à la rendre négative.

En effet, cette étape de photolithographie se déroule comme suit : nous étalons la résine Ti09 sur un wafer de silicium ayant un diamètre de 100 mm et une épaisseur de 500  $\mu\text{m}$  par l'intermédiaire de la RC8, ensuite la résine sera cuite à une température de 100  $^{\circ}\text{C}$  pendant 65 secondes afin d'évaporer le solvant. L'étape suivante consiste à aligner le photo-masque en utilisant l'aligneur EVG620 pour insoler la résine par des rayonnements ultraviolets à une dose de 80  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ . Cette exposition va produire la première modification chimique de la résine (la partie exposée sera soluble).

Puis le wafer est recuit une deuxième fois à une température de 300 °C pendant 65 secondes. Ce recuit d'inversion produit une transformation chimique uniquement de la partie exposée de la résine qui la rend ainsi insoluble.

Ensuite le wafer est exposé une nouvelle fois aux UV ( $E = 300 \text{ mJ/cm}^2$ ) mais cette fois-ci sans masque en utilisant le procédé Flood. Cette deuxième exposition a pour but d'insoler la partie de résine qui était sous le chrome et qui n'a pas été exposée lors de la première exposition. Cela la rendra soluble dans la solution du développeur.

Enfin et pour révéler les motifs, le wafer est développé dans une solution de MF26A pendant 20 secondes.

Pour résumer, la résine positive inversible peut se comporter comme une résine négative. Les étapes de cette transformation se fait de la manière suivante :

1. Récuit de la résine Ti09,
2. Exposition de la résine aux rayonnements ultra-violets à travers un masque,
3. Deuxième recuit de la résine,
4. Deuxième exposition de la résine aux UV, mais sans masque.

### 2.7.2/ GRAVURE

Une fois le masque imprimé sur le wafer de silicium, une étape de gravure est nécessaire afin de préparer le moule qui sera utilisé pour préparer le dispositif microfluidique en PDMS. La profondeur de la gravure a été de l'ordre de 50  $\mu\text{m}$ .

Ensuite la surface du wafer de silicium reçoit un traitement anti-adhésif en déposant une très fine couche de téflon par l'intermédiaire du gaz  $\text{C}_4\text{F}_8$ . Cette couche est de l'ordre de 100 nm et se fait en utilisant le procédé de passivation de la DRIE.

### 2.7.3/ RÉALISATION DU PDMS

La préparation du PDMS se fait de la manière suivante :

- Dans un bécher, on mélange le polymère sylgard 184A avec le catalyseur sylgard 184B dans une proportion de 10 à 1, et jusqu'à avoir une pâte blanche visqueuse.
- Le bécher sera placé ensuite dans une enceinte sous vide (figure 2.30) afin d'enlever les bulles d'air et obtenir une pâte claire bien transparente.
- Sur une plaque métallique, nous mettons le wafer de silicium (le moule), sur lequel nous versons le PDMS déjà prêt à utiliser. Le travail est toujours réalisé dans l'enceinte à vide. Une fois le vide est atteint, le polymère sera cuit à une température de 70 °C pendant deux heures.
- Après deux heures, nous faisons le démoulage et nous découpons les dispositifs de PDMS.

### 2.7.4/ CONNECTIQUE

Afin de pouvoir tester le dispositif microfluidique intégré sur PDMS, nous le plaçons entre une plaquette de PMMA et une plaquette du verre. L'ensemble est ensuite fermé comme le montre la figure 2.31.



FIGURE 2.30 – Enceinte à vide utilisée dans le procédé de préparation du PDMS.

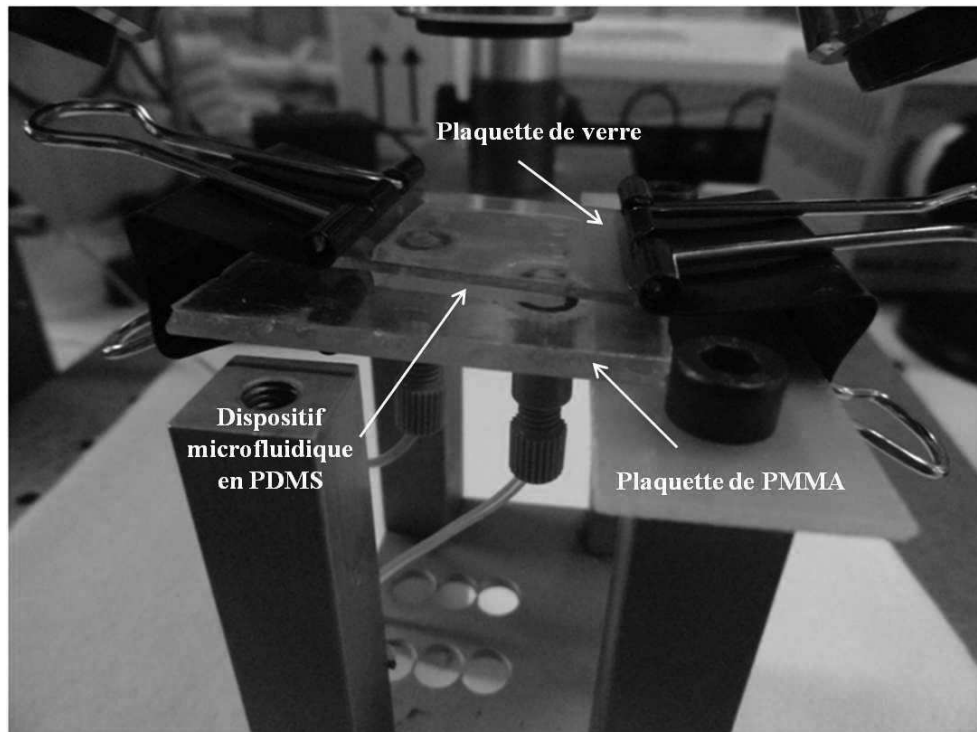


FIGURE 2.31 – Dispositif microfluidique en PDMS placé entre une plaque de verre et une plaque de PMMA.

La liaison formée entre le dispositif en PDMS et la plaquette de PMMA est une liaison de type Van der Waals. Cette liaison est réversible mais étanche à condition d'avoir une pression  $< 0,34 \cdot 10^5$  Pa [101].

Il faut noter que la plaquette de PMMA a été percée pour former des trous permettant l'accès des fluides dans les microcanaux en PDMS. Des connecteurs (Nanopore) sont ensuite collés sur ces trous (figure 2.32).

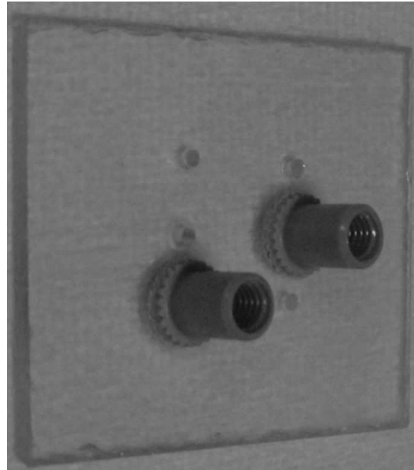


FIGURE 2.32 – Schéma des connecteurs (Nanopore) collés sur les trous d'une plaquette de PMMA.

La connexion entre les mondes microscopique et macroscopique est faite de la même façon qu'avec les premiers dispositifs microfluidiques intégrés sur silicium (figure 2.18), à la seule différence l'utilisation des connecteurs Nanopore au lieu des aiguilles et bien sûr le luer adapté à ces connecteurs.

## 2.8/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes étapes de fabrication des microcanaux fluidiques consacrées à la génération de gouttelettes, ainsi que les connectiques utilisées pour relier les mondes microscopique et macroscopique.

Ces dispositifs ont été réalisés en utilisant deux types de matériaux : le silicium et le PDMS. Dans le cas des dispositifs intégrés sur silicium, les problèmes liés aux fuites (lorsque la pression en entrée était trop forte), nous a obligé à réaliser deux séries de dispositifs afin de minimiser la perte de charge. D'autre part, des dispositifs en PDMS ont été réalisés pour avoir une référence par rapport à la littérature.

# GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES EN RÉGIME DRIPPING

## 3.1/ INTRODUCTION

Dans ce chapitre, l'objectif est d'étudier la génération des micro-gouttelettes d'huile dans l'eau dans une jonction en T, et de montrer l'effet de la géométrie des microcanaux (en particulier la longueur et la profondeur) et les vitesses des liquides sur leur taille.

Différents dispositifs microfluidiques ayant différentes sections des microcanaux des phases continue et dispersée ont été fabriqués et testés.

Des études expérimentales ainsi qu'un modèle analytique décrivant la génération de gouttelettes dans le régime dripping seront présentés.

## 3.2/ RÉGIMES DE GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES DANS UNE T-JONCTION

Dans nos dispositifs microfluidiques en T-jonction, quatre régimes de génération de gouttelettes ont été observés :

- Régime jetting
- Régime squeezing
- Régime dripping
- Régime balloon

Les trois premiers régimes de génération de gouttelettes sont des régimes bien connus et on trouve dans la littérature plusieurs articles décrivant les conditions de leur obtention [56, 57, 50, 49, 54], alors que le quatrième régime est un régime particulier qui sera décrit pour la première fois dans le cadre de cette thèse. En ce qui se suit, nous allons développer juste les deux derniers régimes de génération pour les raisons suivantes :

- Le régime jetting (figure 3.1) est un régime de génération qui est instable et dont les conditions d'obtention sont difficiles à contrôler (paragraphe 1.4.3.3 du chapitre 1).
- Le régime squeezing (figure 3.2) est un régime de génération dont lequel la taille de la gouttelette est supérieure à la largeur du microcanal contenant la phase continue  $w_c$  (paragraphe 1.4.3.1 du chapitre 1), et comme le but initial était d'obtenir la gouttelette la plus petite possible, nous avons donc préféré travailler dans le régime dripping donnant des gouttelettes plus petites.

Donc, dans tout ce qui se suit nous discutons la formation des gouttelettes d'huile dans l'eau dans le régime dripping.

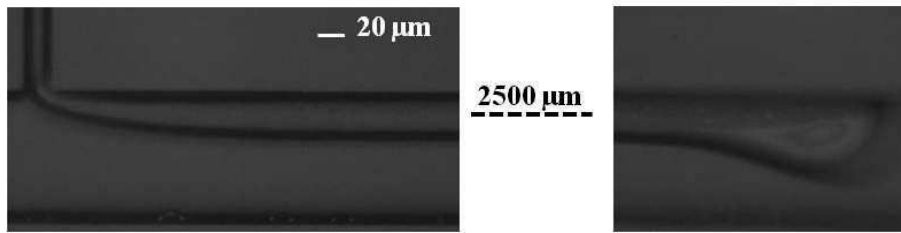


FIGURE 3.1 – Formation de la gouttelette dans le régime jetting : la phase dispersée forme un long filament dans le microcanal de la phase continue.

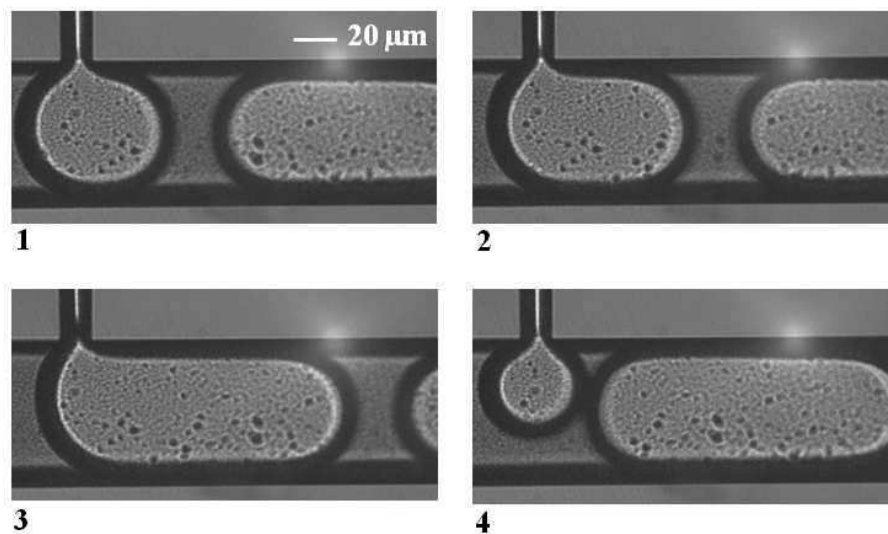


FIGURE 3.2 – Formation de la gouttelette dans le régime squeezing : la gouttelette occupe la totalité du microcanal de la phase continue.

Avant de détailler le mécanisme de génération de gouttelettes en régime dripping, ainsi que les paramètres utilisés pour contrôler leur taille, nous discutons tout d'abord la forme 3D de la gouttelette puis nous abordons la répétabilité de nos expériences et la monodispersité des gouttelettes générées.

### 3.3/ FORME 3D DE LA GOUTTELETTE

Dans un premier temps, nous avons voulu savoir la forme 3D probable de la gouttelette générée dans nos dispositifs microfluidiques, alors que nous ne pouvons observer les gouttelettes que par en dessus. Ainsi, nous avons comparé la fréquence de génération de gouttelettes obtenue expérimentalement (par imagerie) en comptant le nombre de gouttelettes générées par une certaine unité de temps, généralement 1 seconde, et celle calculée en considérant que la gouttelette est sphérique puis en la considérant cylindrique.

A la base le choix de ces deux formes des gouttelettes est fait puisqu'elles sont les formes les plus stables possibles.

Le calcul se fait de la façon suivante : nous savons que la fréquence  $f$  de génération de gouttelettes est liée au débit de la phase dispersée  $Q_d$  (imposé par le pousse-seringue) par



l'équation :

$$f = \frac{Q_d}{V_g} \quad (3.1)$$

avec  $V_g$  le volume de la gouttelette formée.

Si la gouttelette est sphérique, le volume  $V_g$  est donné par :

$$V_g = \frac{4}{3}\pi\frac{d^3}{8} \quad (3.2)$$

avec  $d$  le diamètre de la gouttelette mesuré expérimentalement.

Alors que si la gouttelette est cylindrique, le volume  $V_g$  est donné par :

$$V_g = \pi\frac{d^2}{4}h \quad (3.3)$$

avec  $h$  la hauteur de la gouttelette considérée comme étant la profondeur du microcanal.

La valeur de la fréquence de génération obtenue à partir de l'équation 3.1 pour les deux formes 3D possibles de la gouttelette sera comparée avec celle obtenue expérimentalement.

Dans la table 3.1, nous présentons quelques valeurs de la fréquence  $f$  de génération obtenues expérimentalement et par calcul dans les deux cas de gouttelettes sphériques et cylindriques.

|                         |                                    |       |       |       |
|-------------------------|------------------------------------|-------|-------|-------|
| Dispositif              | $w_d(\mu\text{m})$                 | 10    | 10    | 20    |
|                         | $w_c(\mu\text{m})$                 | 100   | 100   | 100   |
|                         | $h(\mu\text{m})$                   | 46    | 72    | 72    |
| Expérience              | $Q_d$ ( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) | 0,414 | 0,648 | 1,296 |
|                         | $Q_c$ ( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) | 150   | 40    | 200   |
|                         | $d$ ( $\mu\text{m}$ )              | 35    | 68    | 58    |
|                         | $f$ (gouttelettes/s)               | 154   | 40    | 110   |
| Gouttelette sphérique   | $V_g$ ( $\times 10^{-12} m^3$ )    | 0,022 | 0,164 | 0,103 |
|                         | $f$ (gouttelettes/s)               | 307   | 66    | 210   |
|                         | Écart (%)                          | 99,3  | 65    | 90,9  |
| Gouttelette cylindrique | $V_g$ ( $\times 10^{-12} m^3$ )    | 0,044 | 0,262 | 0,19  |
|                         | $f$ (gouttelettes/s)               | 156   | 41    | 114   |
|                         | Écart (%)                          | 1,3   | 2,4   | 3,5   |

TABLE 3.1 – Comparaison entre les fréquences de génération expérimentales et théoriques.

Les écarts (pour la fréquence de génération) entre les valeurs expérimentales  $f_e$  et théoriques  $f_t$  ont été calculés de la façon suivante :  $\text{Écart} = \frac{|f_t - f_e|}{f_e} \times 100$ .

En se basant sur les données de la table 3.1, nous remarquons que les écarts entre les valeurs expérimentales et celles obtenues par le calcul, sont petits dans le cas où la gouttelette est considérée cylindrique (écart  $< 4\%$ ), alors qu'ils sont beaucoup plus grands dans le cas où la gouttelette est considérée sphérique (écart arrivant jusqu'à  $90\%$ ).

Cela nous permet de dire que les gouttelettes générées dans nos dispositifs microfluidiques sont cylindriques.

Il faut noter que dans les cas précédents, le diamètre  $d$  de la gouttelette est inférieur à la profondeur  $h$  des microcanaux, donc les deux formes sphérique et cylindrique de la

gouttelette étaient possibles, raison pour la quelle nous avons fait la comparaison entre ces deux formes.

Mais dans les cas où le diamètre de la gouttelette est supérieur à la profondeur des microcanaux, la gouttelette ne peut pas être sphérique, elle ne peut être que cylindrique (table 3.2).

|            |                                    |      |       |       |       |
|------------|------------------------------------|------|-------|-------|-------|
| Dispositif | $w_d(\mu\text{m})$                 | 50   | 20    | 20    | 10    |
|            | $w_c(\mu\text{m})$                 | 100  | 100   | 100   | 100   |
|            | $h(\mu\text{m})$                   | 46   | 46    | 23    | 23    |
| Expérience | $Q_d$ ( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) | 2,07 | 0,828 | 0,414 | 0,207 |
|            | $Q_c$ ( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) | 20   | 100   | 15    | 25    |
|            | $d$ ( $\mu\text{m}$ )              | 128  | 60    | 96    | 71    |
|            | $f$ (gouttelettes/s)               | 59   | 104   | 41    | 37    |
| Théorie    | $V_g$ ( $\times 10^{-12} m^3$ )    | 0,59 | 0,13  | 0,166 | 0,09  |
|            | $f$ (gouttelettes/s)               | 58   | 106   | 42    | 38    |
|            | Écart (%)                          | 1,7  | 1,9   | 2,4   | 2,6   |

TABLE 3.2 – Gouttelettes cylindriques pour  $d > h$ .

Les résultats tirés de la table 3.2 montrent la compatibilité de la fréquence de génération de gouttelettes cylindriques entre les valeurs expérimentales et théoriques (écart  $< 4\%$ ).

Dans nos dispositifs microfluidiques, la forme cylindrique de la gouttelette se traduit donc par une géométrie plutôt bidimensionnelle.

### 3.4/ RÉPÉTABILITÉ

La répétabilité des résultats est un des paramètres les plus intéressants dans une expérience. Afin de vérifier la répétabilité de nos résultats dans les dispositifs microfluidiques, des essais ont été faits dans des intervalles de temps variés et nous avons observé que les résultats sont répétables à court terme, mais une fois que la puce microfluidique vieillit (après à peu près trois mois), elle ne génère plus de gouttelettes, probablement en raison de la présence d'huile sur les parois des microcanaux. Comme nous avons expliqué dans le paragraphe 2.5.1 du chapitre 2, les parois des microcanaux ne sont pas parfaitement lisses (effet scalloping), ce qui favorise l'accrochage d'huile sur les parois.

La figure 3.3 présente les essais réalisés dans un même dispositif microfluidique à différents intervalles de temps (table 3.3), montrant une excellente stabilité jusqu'à 70 jours. A 90 jours, le dispositif microfluidique ne génère plus de tout de gouttelettes.

| Essai | Temps (jours) |
|-------|---------------|
| 1     | 0             |
| 2     | 5             |
| 3     | 20            |
| 4     | 45            |
| 5     | 70            |

TABLE 3.3 – Essais réalisés à des temps différents en considérant que le temps 0 correspond à la première fois où le dispositif microfluidique est utilisé.

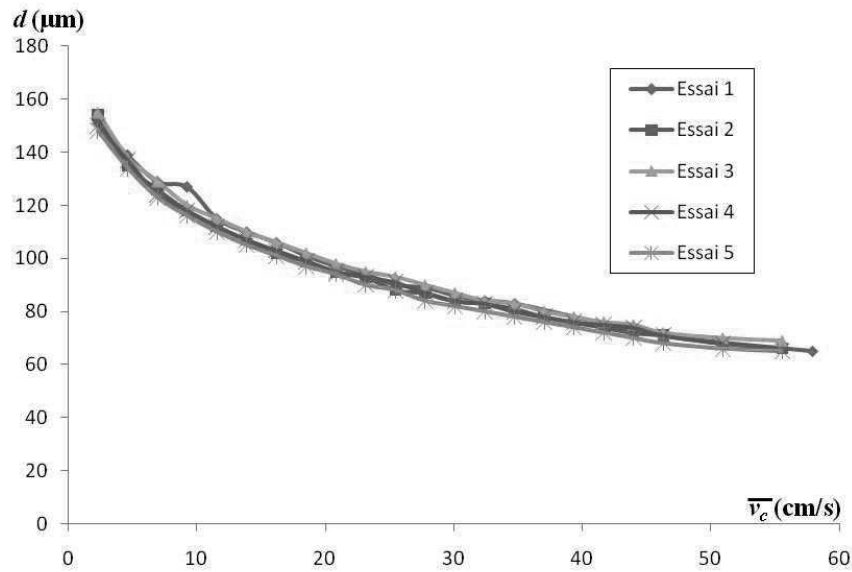


FIGURE 3.3 – Répétabilité des essais, avec  $w_d = 50 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \text{ }\mu\text{m}$  et  $h = 72 \text{ }\mu\text{m}$ .

### 3.5/ MONODISPERSITÉ

La génération de gouttelettes monodispersées c'est-à-dire des gouttelettes ayant une taille identique est essentielle pour des nombreuses applications. L'utilisation de la géométrie T-jonction avec des écoulements laminaires (pas de turbulences, donc pas de chaos), assure l'obtention de ces gouttelettes monodispersées.

La table 3.4 représente des exemples des diamètres obtenus en utilisant le dispositif microfluidique ayant les dimensions suivantes :  $w_d = 10 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \text{ }\mu\text{m}$  et  $h = 46 \text{ }\mu\text{m}$ . La vitesse de l'huile ( $\bar{v}_d$ ) est de 1,5 cm/s. Les résultats tirés de la table 3.4 montrent que les gouttelettes sont monodispersées avec un taux de polydispersité qui ne dépasse pas les 2 %. Une valeur moyenne est calculée et est considérée comme étant le diamètre effectif de la gouttelette générée.

### 3.6/ MÉCANISME ET MODÈLE DE FORMATION DES GOUTTELETTES EN RÉGIME DRIPPING

La formation de gouttelettes en régime dripping passe par trois stades principaux (figure 3.4) :

- Stade I : arrivée de la phase dispersée à la jonction en T  
Le procédé de formation de gouttelettes commence dès l'arrivée de la phase dispersée à la jonction en T à  $t = t_0$ . Puis l'huile entre dans le microcanal contenant la phase continue, et commence à prendre une forme circulaire. En effet, cette forme circulaire de la gouttelette a été aussi observée par Van der Graaf et al. [35] au début de la formation d'une gouttelette d'huile dans l'eau dans une jonction en T fabriquée en verre, mais ils ne l'ont pas considéré comme un stade séparé.

| Vitesse de l'eau<br>$\bar{v}_c$ (cm/s) | Diamètres mesurés<br>( $\mu\text{m}$ )  | Diamètre moyen<br>( $\mu\text{m}$ ) | Polydispersité<br>(%) |
|--|---|-------------------------------------|-----------------------|
| 7                                      | 92, 93, 92, 93, 91, 92,<br>92, 93, 91, 92, 92, 93,<br>91, 92, 94, 93, 92, 93,<br>92, 92, 93, 92, 92, 91 | 92                                  | 0,77                  |
| 22                                     | 64, 64, 65, 63, 62, 63,<br>63, 64, 61, 63, 62, 64,<br>63, 63, 62, 61, 62, 63,<br>63, 62                 | 63                                  | 1,01                  |
| 33                                     | 51, 49, 50, 51, 50, 48,<br>52, 50, 50, 51, 53, 52,<br>50, 50, 48, 51, 50, 49,<br>50, 49, 50             | 50                                  | 1,22                  |
| 54                                     | 34, 35, 35, 35, 37, 34,<br>36, 35, 34, 37, 36, 32,<br>34, 37, 36, 35, 37, 34,<br>32, 36, 33, 35         | 35                                  | 1,46                  |

TABLE 3.4 – Taux de la polydispersité du diamètre de la gouttelette générée dans le dispositif microfluidique avec :  $w_d = 10 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$  et  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ .

La stabilité de la forme géométrique de la gouttelette ajoutée à la tension interfaciale élevée et la faible force de cisaillement exercée par la phase continue (faible viscosité d'eau) assurent la croissance circulaire de la gouttelette. A la fin de ce stade à  $t = t_I$ , la force de drag commence à déformer la gouttelette qui mouille les parois du microcanal de la phase continue.

A ce stade, la taille de la gouttelette dépend uniquement de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$ . En effet la gouttelette a une forme circulaire et forme un angle  $\theta$  avec les parois du microcanal de la phase continue (figure 3.5). Cet angle est constant et dépend essentiellement des propriétés interfaciales, surtout les propriétés de mouillage de la phase aqueuse. Le rayon  $r$  de la gouttelette formée à ce stade peut être exprimé par l'équation suivante :

$$\sin \theta = \frac{w_d}{2r} \quad (3.4)$$

A une faible vitesse de la phase dispersée, ce stade là continue jusqu'au moment de détachement conduisant ainsi à l'apparition d'un nouveau régime de génération de gouttelettes que nous avons appelé le régime balloon [106], et qui sera discuté dans le chapitre 4.

– Stade II : gonflement de la gouttelette

A ce stade, la gouttelette se gonfle et se déforme avant qu'elle ne commence à se détacher et sa forme est maintenue par un équilibre entre la tension interfaciale et la force de drag [48, 35, 54].

Nous définissons la fin de ce stade  $t = t_{II}$  quand la gouttelette formée est tangente au bord amont du microcanal contenant la phase dispersée. Cet instant est observé facilement lors de nos expériences. A cet instant là, la gouttelette est déformée et sa forme est donnée par la figure 3.6, où la surface de la gouttelette est  $S$ .

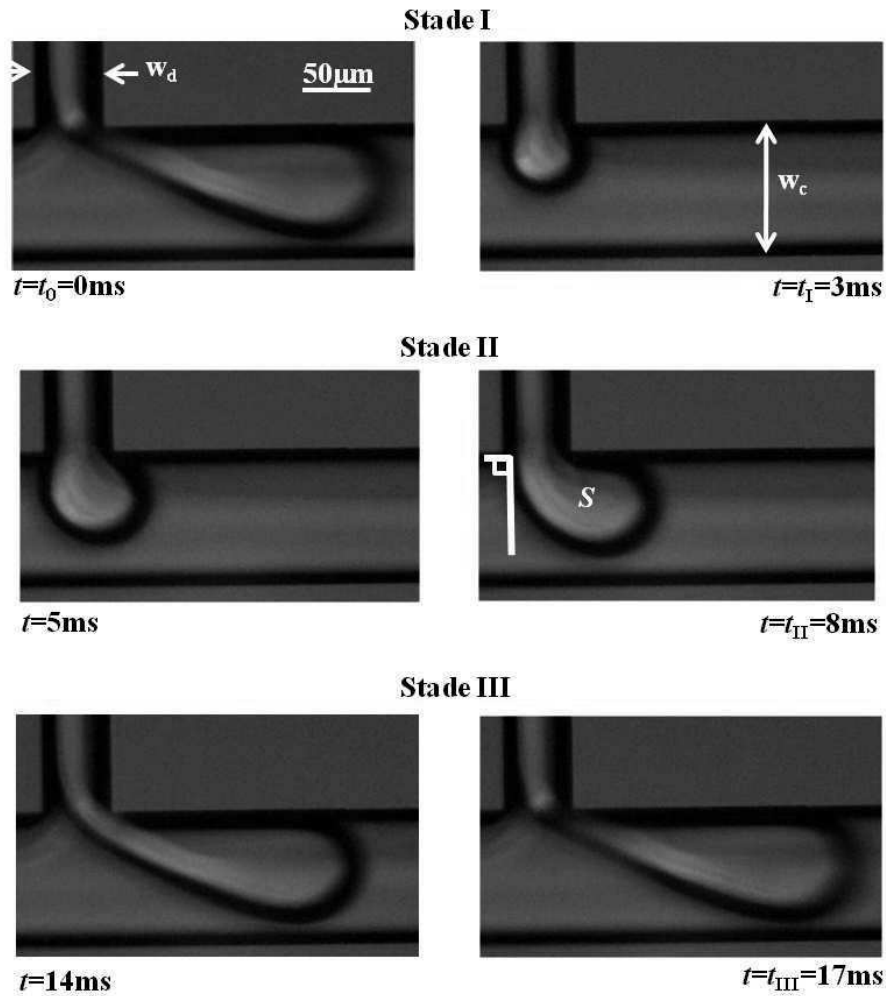


FIGURE 3.4 – Mécanisme de formation de la gouttelette avec  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_c = 7,25 \text{ cm/s}$ .

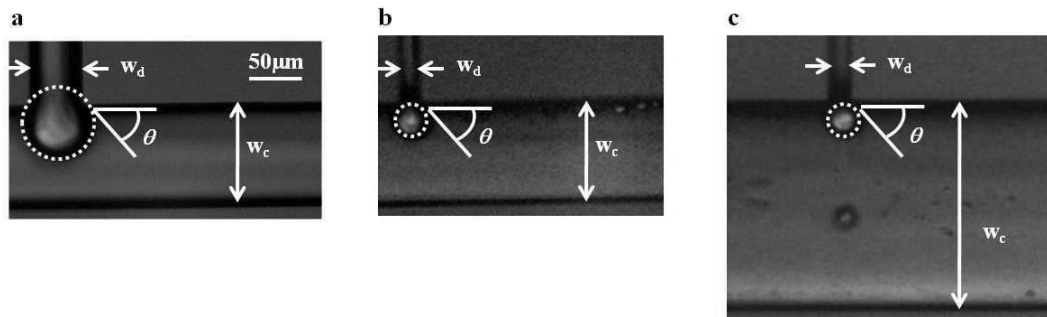


FIGURE 3.5 – Formation de la gouttelette dans le régime dripping : fin du stade I, avec :  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ ,  $\bar{v}_c = 7,5 \text{ cm/s}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$  et  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$  (a),  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$  (b),  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 200 \mu\text{m}$  (c).

Nous allons maintenant essayer d'écrire plus en détail l'équilibre des forces autour de la gouttelette d'huile, en ne considérant que les composantes dirigées le long du microcanal de la phase continue.

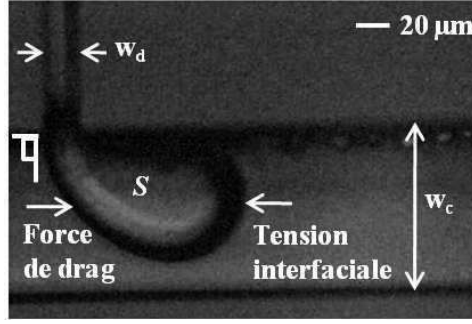


FIGURE 3.6 – Formation de la gouttelette dans le régime dripping : fin du stade II, avec  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$  et  $h = 46 \mu\text{m}$ .

La tension interfaciale donne lieu à des forces de tension dirigées dans la direction tangente aux bords de la gouttelette touchant la paroi du microcanal de la phase continue. Sur la partie aval de la gouttelette, la force est dirigée le long du microcanal de la phase continue, et est donnée par :

$$F_{tension} = -\sigma h \quad (3.5)$$

Au bord amont, cette force est perpendiculaire au microcanal. Le signe moins signifie simplement que la force est dirigée vers l'amont et tend à maintenir la gouttelette à sa place. C'est le même résultat décrit par Christopher et al. [54], en utilisant l'argument de la pression de Laplace (en effet, les rayons de courbures en amont et en aval de la gouttelette sont respectivement  $r$  et  $\frac{r}{2}$ , cela nous permet d'écrire  $\Delta P = \sigma(\frac{1}{r} - \frac{2}{r}) = -\frac{\sigma}{r}$ , conduisant ainsi à une force de tension  $F_{tension} \approx \Delta P h r = -\sigma h$ ) mais ils ne précisent pas clairement que cette expression implique un choix particulier pour la fin de la phase d'équilibre (voir paragraphe 1.4.2.2 du chapitre 1).

La force de drag est composée de deux composantes : une composante de pression qui peut être exprimée de la façon suivante :  $F_{pression} = \Delta P h r$  avec  $\Delta P$  la différence de pression de part et d'autre de la gouttelette,  $h$  la profondeur du microcanal et  $r$  le rayon de la gouttelette, et une composante de cisaillement exprimée par :  $F_{cisaillement} \propto \tau B = \mu_c \frac{\partial u}{\partial y} B$  avec  $B$  la surface de la gouttelette parallèle au courant d'eau, et  $\mu_c$  la viscosité dynamique de l'eau.

La forme compacte de la gouttelette assure qu'à cet instant, la force de drag est dominée par la force de pression au lieu de la force de cisaillement, et cela est aggravée, dans notre cas, par la faible valeur de la viscosité du liquide de la phase continue ( $\mu_c$  de l'eau). On peut donc écrire :  $F_{drag} \approx F_{pression} = \Delta P h r$ .

La différence de pression est donnée par :  $\Delta P = 32 \frac{\mu_c L}{D_h^2} v$  (voir paragraphes 1.2.3 du chapitre 1 et 2.5.9 du chapitre 2)

La vitesse qui doit être prise en considération, comme cela a été déjà suggéré par Thorsen et al. [37], est la vitesse de l'eau dans la zone entre la gouttelette et la paroi du microcanal de la phase continue :  $v = \frac{w_c}{w_c - r} \bar{v}_c$ , avec  $\bar{v}_c = \frac{Q_c}{h w_c}$  la vitesse moyenne de l'eau. Des simples considérations géométriques nous permettent de dire que  $L \approx r$  (figure 3.7) et que le diamètre hydraulique  $D_h = \frac{4h(w_c - r)}{2(h + (w_c - r))}$ .

Donc,

$$\Delta P \approx \frac{8\mu_c \bar{v}_c w_c r (h + w_c - r)^2}{h^2 (w_c - r)^3} \quad (3.6)$$

Et ainsi,

$$F_{drag} \approx F_{pression} \approx \frac{8\mu_c \bar{v}_c w_c r^2 (h + w_c - r)^2}{h(w_c - r)^3} \quad (3.7)$$

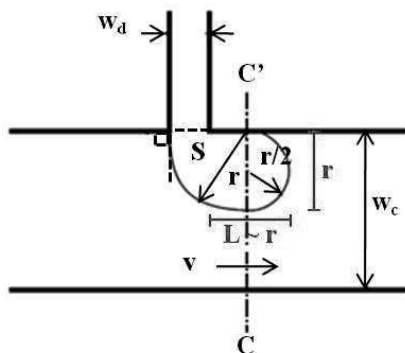


FIGURE 3.7 – Schéma représentant une vue de dessus de la gouttelette.

L'équilibre entre la force de drag et la tension interfaciale donne :

$$F_{tension} + F_{drag} = -h\sigma + \frac{8\mu_c \bar{v}_c w_c r^2 (h + w_c - r)^2}{h(w_c - r)^3} = 0 \quad (3.8)$$

Cette équation du quatrième ordre a deux racines imaginaires et deux racines réelles avec une seule expression donnant des résultats significatifs.

La résolution de cette équation donne  $r$ . Des simples considérations géométriques sur la forme de la gouttelette (figure 3.7), nous permet de lier  $r$  à la surface  $S$  de la gouttelette, donc à la fin du stade II, on peut écrire :

$$S = \frac{3\pi}{8} r^2 \quad (3.9)$$

En étudiant les courbes obtenues à partir de l'équation 3.8, on note que cette surface présente une faible dépendance avec  $h$ .

– Stade III : détachement de la gouttelette

Après  $t = t_{II}$ , la gouttelette commence son détachement au bord amont du microcanal contenant la phase dispersée et se déplace rapidement vers l'aval pour fermer l'écoulement d'huile dans la gouttelette. La direction de détachement de la gouttelette est déterminée par la direction de l'écoulement de l'eau. Le gonflement de la gouttelette  $s$  est lié au débit de la phase dispersée et peut être exprimé par :

$$s = t_{neck} \bar{v}_d w_d \quad (3.10)$$

avec  $t_{neck} = t_{III} - t_{II}$  le temps nécessaire pour cisailier le col de la gouttelette de rayon  $r$  [40].

Le temps d'étranglement (necking) est inversement proportionnel au taux de cisaillement ( $\mu_c \bar{v}_c$ ) imposé par la phase continue, mais est également proportionnel à la viscosité de la phase dispersée ( $\mu_d$ ), donc nous pouvons écrire  $t_{neck} = \frac{r\mu_d}{\mu_c \bar{v}_c}$ .

A la fin de ce stade à  $t = t_{III}$ , la gouttelette de surface  $S + s$  est détachée et un nouveau cycle de génération commence.

Étant donné que la gouttelette atteint la chambre de stockage à la sortie, elle tend à prendre une forme plutôt sphérique, mais sa profondeur est limitée par la profondeur

du microcanal, ce qui la conduit à avoir une forme quasi cylindrique avec une hauteur  $h$ . Le diamètre  $d$  de la gouttelette est donc exprimé par :

$$d = \alpha \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{S + s} \quad (3.11)$$

Le paramètre  $\alpha$  est le seul paramètre d'ajustement utilisé dans notre modèle et il regroupe toutes les hypothèses de simplification.

En utilisant ce modèle de perte de charge, et en introduisant les effets de la viscosité, nous allons voir dans les paragraphes suivants que notre modèle analytique approche mieux les résultats expérimentaux obtenus que les modèles de la littérature.

### 3.7/ EXPRESSION DE LA PERTE DE CHARGE DANS UN ÉTRANGLEMENT DE MICROCANAL

En utilisant le logiciel COMSOL MULTIPHYSICS, nous avons simulé la perte de charge dans la zone entre la gouttelette et la paroi du microcanal de la phase continue. Cette différence de pression permet d'obtenir le paramètre  $\Delta P$  du modèle. Nous avons ensuite comparé cette différence de pression simulée à celle obtenue en utilisant notre modèle analytique, ainsi que les modèles de Garstecki et al. [53] et Christopher et al. [54].

Afin de faciliter la simulation, nous avons utilisé la géométrie présentée dans la figure 3.8. Dans ce cas, nous n'avons pas pris la vraie forme de la gouttelette à la fin du stade II, mais plutôt nous l'avons estimé à une géométrie rectangulaire.

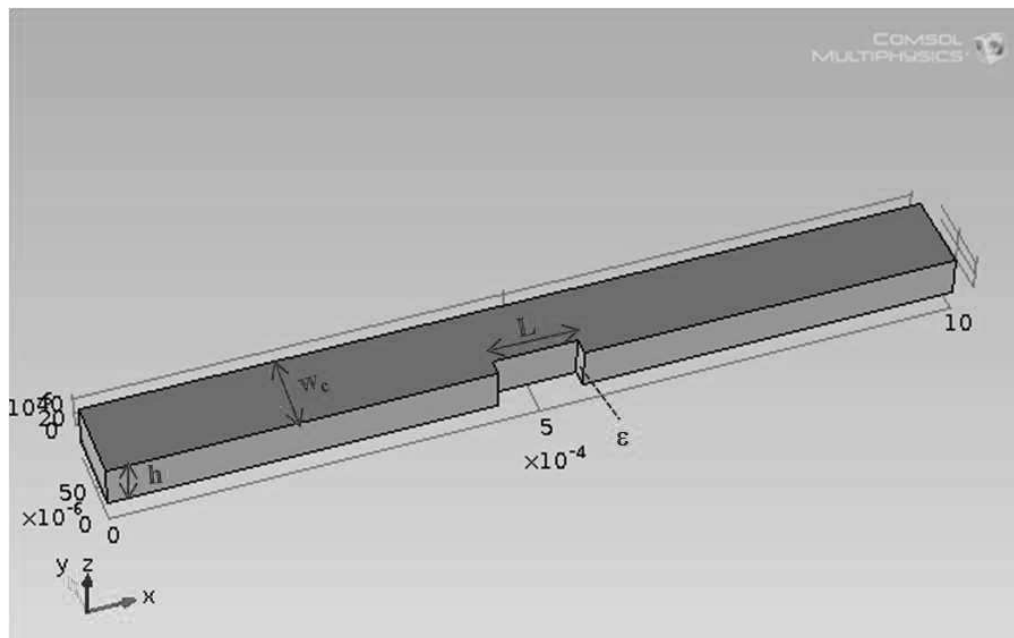


FIGURE 3.8 – Géométrie utilisée pour simuler la perte de charge entre la gouttelette et les parois du microcanal de la phase continue.

Les conditions sont les suivantes : profondeur du microcanal  $h = 50 \mu\text{m}$ , largeur du microcanal  $w_c = 100 \mu\text{m}$ , viscosité dynamique de l'eau  $\mu_c = 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$  et vitesse à l'entrée  $\bar{v}_c = 1 \text{ cm/s}$ .



Au fur et à mesure que la gouttelette se gonfle ( $\epsilon$  augmente), la différence de pression  $\Delta P$  augmente. La figure 3.9 montre deux exemples de la perte de charge pour  $\epsilon = 30 \mu\text{m}$  et  $\epsilon = 90 \mu\text{m}$ . Il faut noter que  $\epsilon$  est pris entre  $2 \mu\text{m}$  et  $98 \mu\text{m}$ .

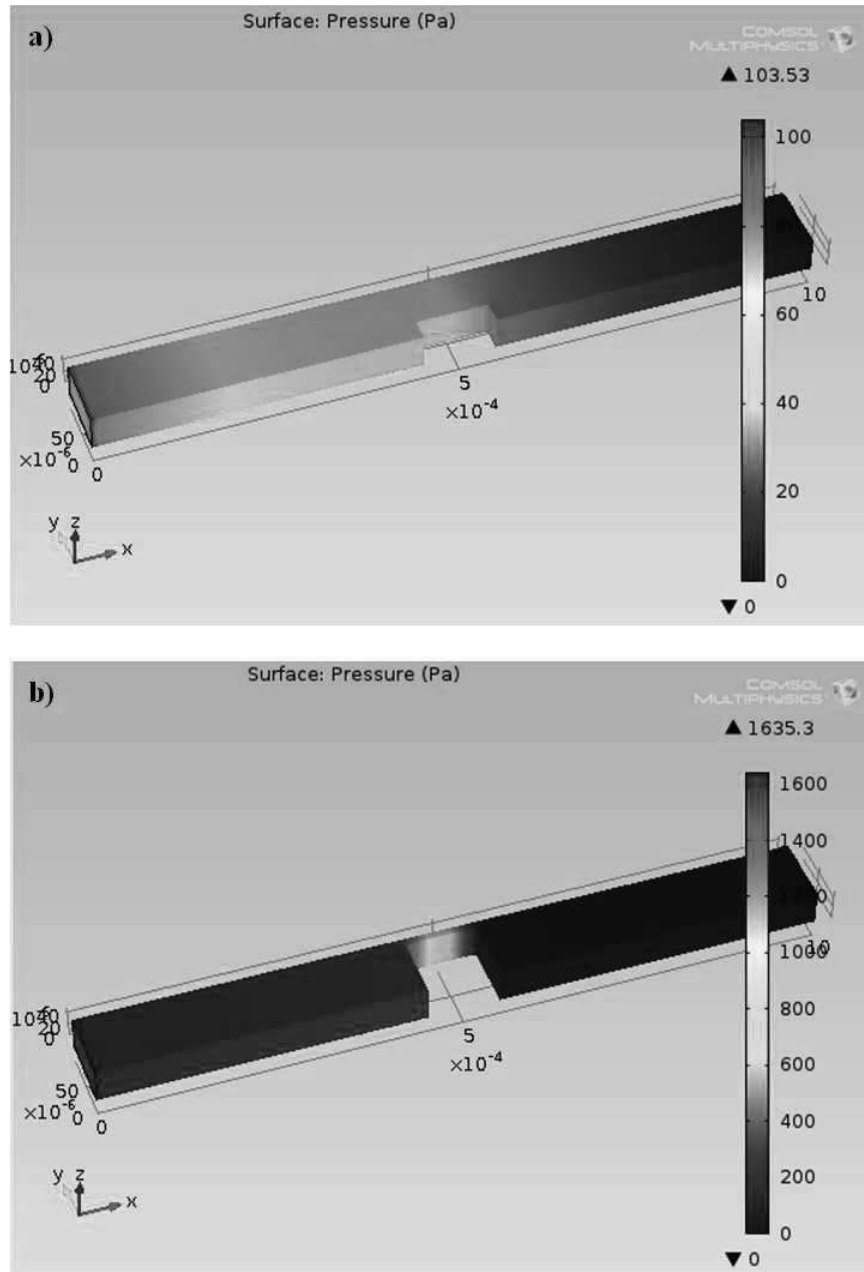


FIGURE 3.9 – Perte de charge entre la gouttelette et les parois du microcanal de la phase continue, avec  $\epsilon = 30 \mu\text{m}$  (a) et  $\epsilon = 90 \mu\text{m}$  (b).

Dans notre cas, nous avons exprimé la perte de charge comme suit :

$$\Delta P = 32 \frac{\mu_c w_c \bar{v}_c L (h + w_c - \epsilon)^2}{4h^2 (w_c - \epsilon)^3} \quad (3.12)$$

Alors que Garstecki et al. [53] ont écrit :

$$\Delta P \approx \frac{\mu_c w_c \bar{v}_c L}{h(w_c - \epsilon)^2} \quad (3.13)$$

Et Christopher et al. [54] ont donné l'expression suivante :

$$\Delta P \approx \frac{\mu_c w_c \bar{v}_c L}{(w_c - \epsilon)^3} \quad (3.14)$$

La figure 3.10 illustre la comparaison entre la perte de charge simulée avec COMSOL et celles utilisées dans les modèles de Garstecki et al. [53], Christopher et al. [54], ainsi qu'avec celle exprimée dans notre modèle analytique.

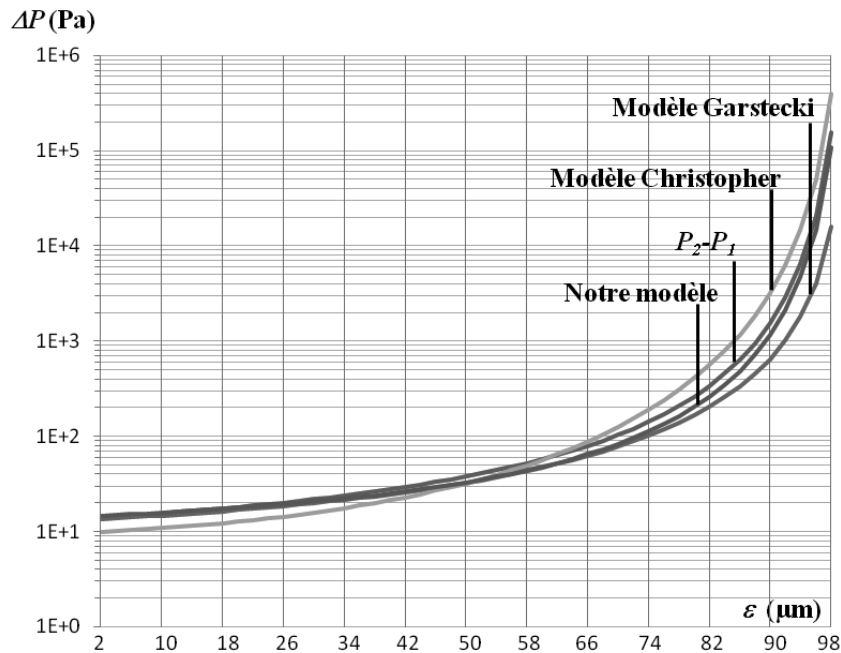


FIGURE 3.10 – Comparaison entre la perte de charge simulée et celles utilisées dans les modèles de Garstecki et al. [53], Christopher et al. [54], et notre modèle analytique.

Les données représentées dans la figure 3.10 montrent que la perte de charge utilisée dans notre modèle analytique approche le mieux de la perte de charge simulée ( $P_2 - P_1$ ) du système.

En effet, dans notre cas nous avons utilisé l'expression complète de la perte de charge de Poiseuille (équation 3.12), contrairement aux deux autres modèles (équations 3.13 et 3.14).

Il faut noter qu'un facteur de 32 a été ajouté aux équations 3.13 et 3.14 afin de faciliter la comparaison de la perte de charge entre notre modèle analytique et les deux autres modèles.

### 3.8/ GÉNÉRATION ACCORDABLE DE GOUTTELETTES EN RÉGIME DRIPPING

#### 3.8.1/ INTRODUCTION

Le but de cette thèse est la génération de gouttelettes de tailles différentes, en vue de les utiliser dans des applications accordables. Dans cet esprit, nous avons choisi des paramètres simples comme la géométrie des microcanaux et les vitesses des fluides pour contrôler leur taille.

Le choix de ces paramètres vient du fait qu'ils présentent une manipulation aisée :

- Pour les microcanaux : il suffit de changer le masque et ainsi préparer des nouveaux dispositifs ayant des largeurs des microcanaux des phases continue et dispersée ( $w_c$  et  $w_d$  respectivement) différents (figure 3.11), et/ou de changer la durée de gravure pour réaliser des nouveaux dispositifs avec des profondeurs  $h$  différentes.

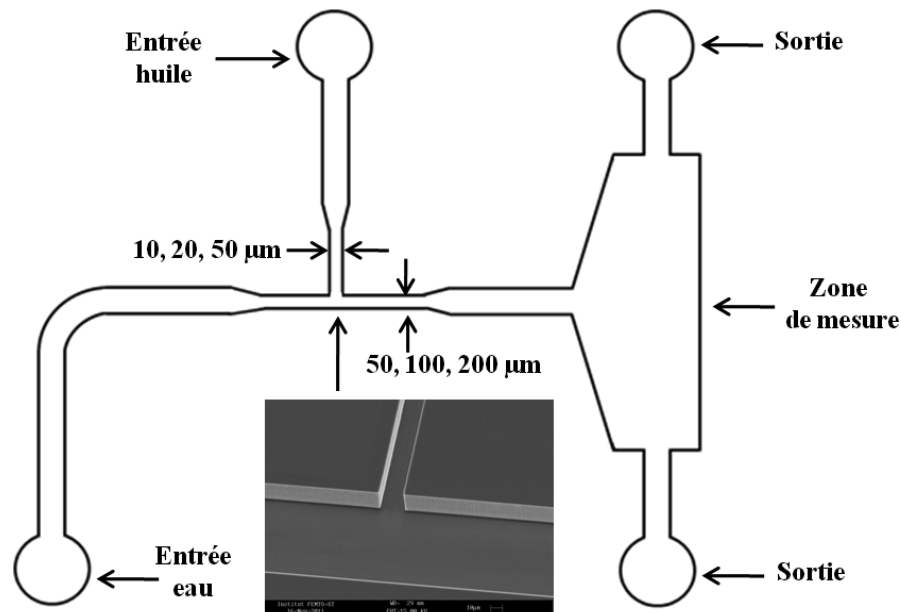


FIGURE 3.11 – Schéma représentant la jonction en T avec différentes largeurs des microcanaux de la phase continue ( $w_c$ ) et de la phase dispersée ( $w_d$ ).

- Pour les vitesses des liquides : il suffit de changer le débit imposé par le pousse-seringue, ce qui conduit à une variation de la vitesse d'écoulement du liquide à l'intérieur des microcanaux.

Dans un premier temps, et comme nous voulons étudier l'effet de la géométrie des microcanaux sur la taille des gouttelettes, la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  a été fixée à 1,5 cm/s pour avoir un même paramètre permettant une comparaison plus facile entre les différents dispositifs microfluidiques. Par contre nous avons varié la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  de 2 à 60 cm/s pour observer l'évolution de la taille de la gouttelette en fonction de la dimension des microcanaux dans une large gamme.

Après, et dans le but d'étudier l'effet de la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  sur la taille de gouttelettes générées en régime dripping, nous la faisons varier de 0,001 à 3 cm/s.

Dans tout ce qui se suit, et contrairement à plusieurs autres auteurs [15, 36, 42], nous allons utiliser la notion de la vitesse et non pas la notion des débits puisque la vitesse est un paramètre plus cohérent reflétant le rapport entre le débit et la section, qui dans notre étude varient d'un dispositif à l'autre.

### 3.8.2/ LARGEUR DU MICROCANAL DE LA PHASE DISPERSÉE

Dans ce paragraphe, nous allons expliquer l'effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  sur la taille de la gouttelette générée en régime dripping, en se basant sur le modèle décrit ci-avant (paragraphe 3.6).

Pour cela, nous avons changé la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  tout en fixant la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$ . En effet, les deux microcanaux ont une largeur de 100  $\mu\text{m}$ . A l'intersection, le microcanal contenant la phase dispersée se rétrécit. Sa longueur est de 500  $\mu\text{m}$ , alors que sa largeur varie d'un dispositif microfluidique à l'autre ( $w_d = 10 \mu\text{m}$ , 20  $\mu\text{m}$  et 50  $\mu\text{m}$ ) (figure 3.11). Le but de cette configuration est de diminuer la perte de charge dans les microcanaux.

Comme  $w_c$  et  $\bar{v}_d$  sont maintenues constantes, quand  $\bar{v}_c$  est fixe, la taille de la gouttelette générée diminue quand la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  diminue (figure 3.12). Ce phénomène peut être expliqué de la manière suivante : A la fin du stade II, la section  $S$  de la gouttelette est principalement régie par la vitesse et la largeur du microcanal de la phase continue ( $\bar{v}_c$  et  $w_c$  respectivement), et indépendante de la géométrie du microcanal de la phase dispersée. Comme nous avons fixé  $w_c$  à 100  $\mu\text{m}$ , quand la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  est constante, la section  $S$  de la gouttelette est constante à  $t = t_{\text{II}}$  (figure 3.13, stade II).

Ainsi le volume de la gouttelette  $V_{\text{crit}} = Sh$  est constant, et il peut être exprimé par l'équation :  $V_{\text{crit}} = Q_d t_{\text{II}}$ , avec  $Q_d$  le débit de la phase dispersée. Comme  $Q_d t_{\text{II}} = Sh$ , donc  $w_d \bar{v}_d t_{\text{II}} = S = \text{constant}$ . Cela peut être vérifié expérimentalement en se basant sur les données de l'imagerie et en utilisant le logiciel ImageJ (annexe B).

Le temps nécessaire pour le gonflement de la gouttelette est une fonction de la vitesse et de la largeur du microcanal de la phase dispersée ( $\bar{v}_d$  et  $w_d$  respectivement), mais comme  $\bar{v}_d$  est maintenue constante, donc  $t_{\text{II}}$  est une fonction de  $w_d$  ( $t_{\text{II}} = \frac{\text{constant}}{w_d}$ ).

La table 3.5 présente les temps du stade II obtenus avec trois dispositifs microfluidiques ( $w_c$  et  $h$  sont constantes et  $w_d$  est variable).

| Dispositif | $w_d$ ( $\mu\text{m}$ ) | $t_{\text{II}}$ (ms) |
|------------|-------------------------|----------------------|
| 1          | 10                      | 41                   |
| 2          | 20                      | 19                   |
| 3          | 50                      | 8                    |

TABLE 3.5 – Temps du stade II : avec  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_c = 7,25 \text{ cm/s}$ .

En se basant sur les données de la table 3.5, nous pouvons calculer le rapport des largeurs du microcanal de la phase dispersée et le comparer avec celui des temps au stade II.

Les résultats obtenus sont présentés dans la table 3.6.

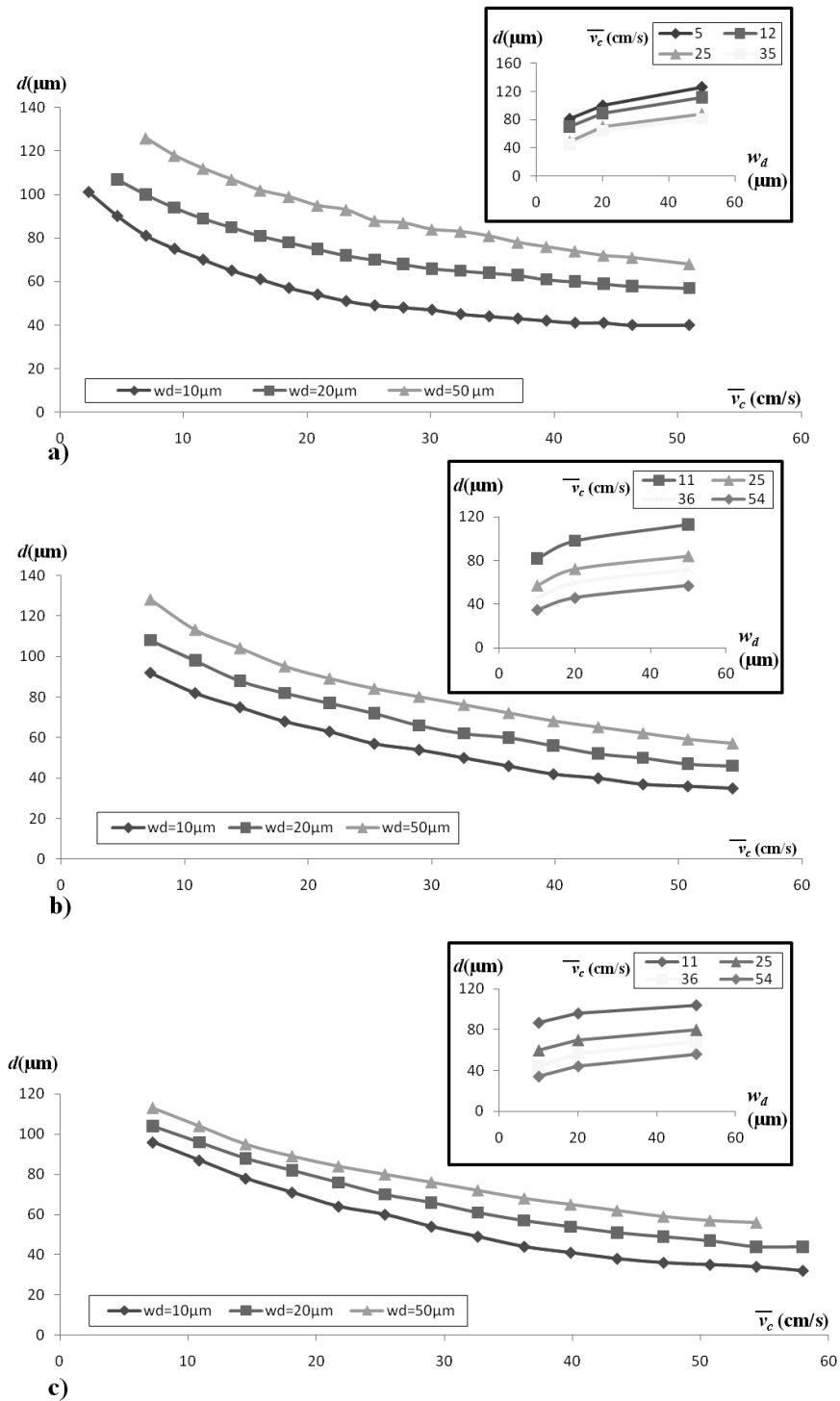


FIGURE 3.12 – Effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  sur le diamètre  $d$  de la gouttelette, avec  $w_c = 100\mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5\text{ cm/s}$  et  $h = 72\mu\text{m}$  (a),  $h = 46\mu\text{m}$  (b),  $h = 23\mu\text{m}$  (c).

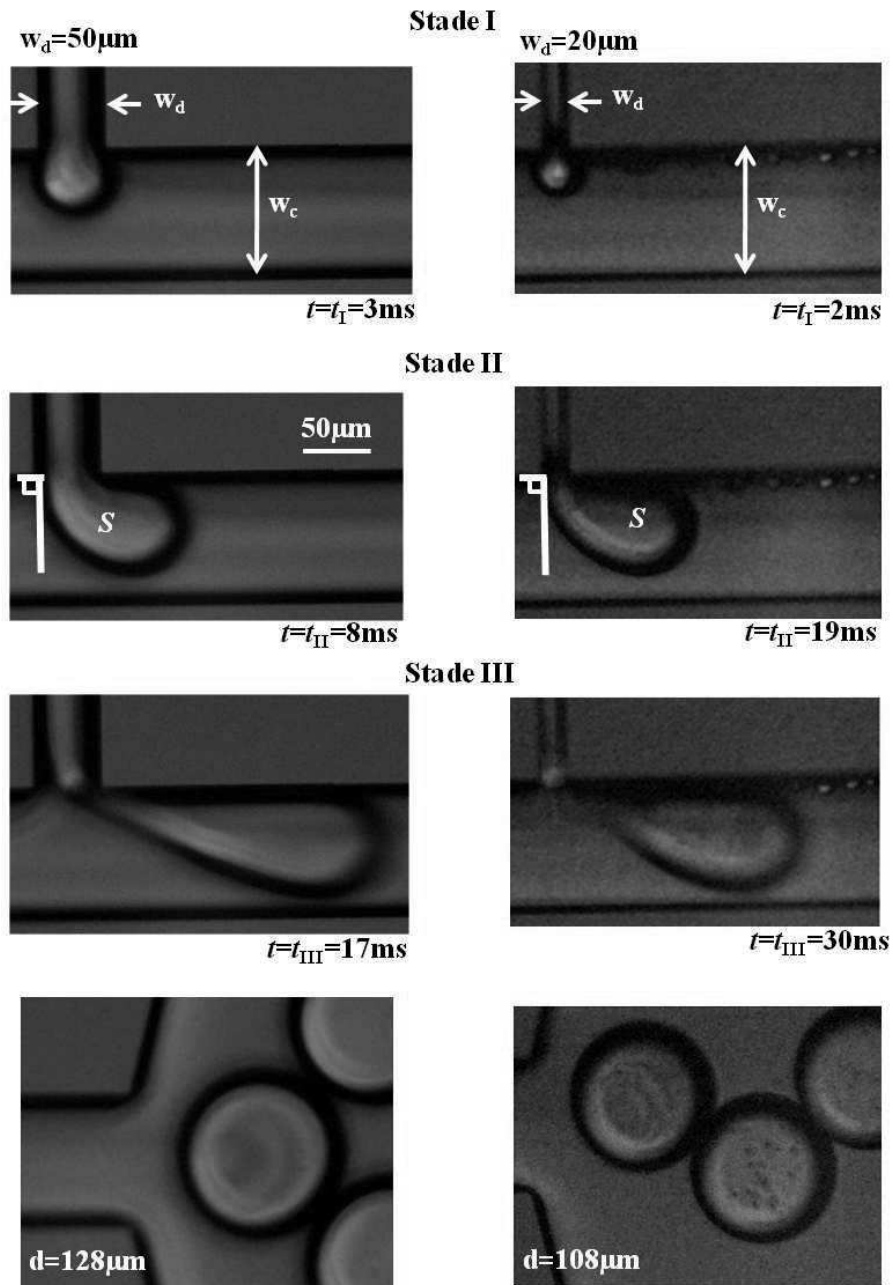


FIGURE 3.13 – Effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée sur la taille de la gouttelette générée, avec  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ ,  $\bar{v}_c = 7,25 \text{ cm/s}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$  et  $w_d = 50 \mu\text{m}$  (à gauche),  $w_d = 20 \mu\text{m}$  (à droite).

| Rapport des $w_d$                             | Rapport des $t_{II}$                                 | Écart (%) |
|---|--|-----------|
| $\frac{w_{d1}}{w_{d2}} = \frac{10}{20} = 0,5$ | $\frac{t_{II(2)}}{t_{II(1)}} = \frac{19}{41} = 0,46$ | 8         |
| $\frac{w_{d1}}{w_{d3}} = \frac{10}{50} = 0,2$ | $\frac{t_{II(3)}}{t_{II(1)}} = \frac{8}{40} = 0,195$ | 2,5       |
| $\frac{w_{d2}}{w_{d3}} = \frac{20}{50} = 0,4$ | $\frac{t_{II(3)}}{t_{II(2)}} = \frac{8}{19} = 0,42$  | 5         |

TABLE 3.6 – Comparaison entre le rapport des largeurs du microcanal de la phase dispersée avec celui des temps au stade II de la formation de la gouttelette avec :  $\text{Écart} = \frac{|R_{\text{rapport}(w_d)} - R_{\text{rapport}(t_{II})}|}{R_{\text{rapport}(w_d)}} \times 100$ .

L'écart entre le rapport des largeurs des microcanaux de la phase dispersée et celui des temps au stade II de la formation de la gouttelette est faible et ne dépasse pas les 10 % (table 3.6).

Ces résultats prouvent que le temps de gonflement de la gouttelette au stade II n'est qu'une fonction de la largeur du microcanal de la phase dispersée comme nous avons discuté ci-dessus.

Au stade III, le gonflement  $s$  de la gouttelette, et comme nous l'avons expliqué avant, est donné par :  $s = t_{\text{neck}} \bar{v}_d w_d$ . A une vitesse fixe de la phase continue  $\bar{v}_c$ , le temps de détachement  $t_{\text{neck}} = \frac{r \mu_d}{\mu_c \bar{v}_c} = \text{constant}$  ( $r$  est constant puisque  $S$  est constante). Étant donné que la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  est maintenue fixe, en diminuant la largeur du microcanal de la phase dispersée, le gonflement de la gouttelette  $s$  (au stade III) diminue et la gouttelette d'huile générée est plus petite (figure 3.13, stade III).

Le comportement observé est similaire à ce qui est prédit par le modèle (figure 3.14).

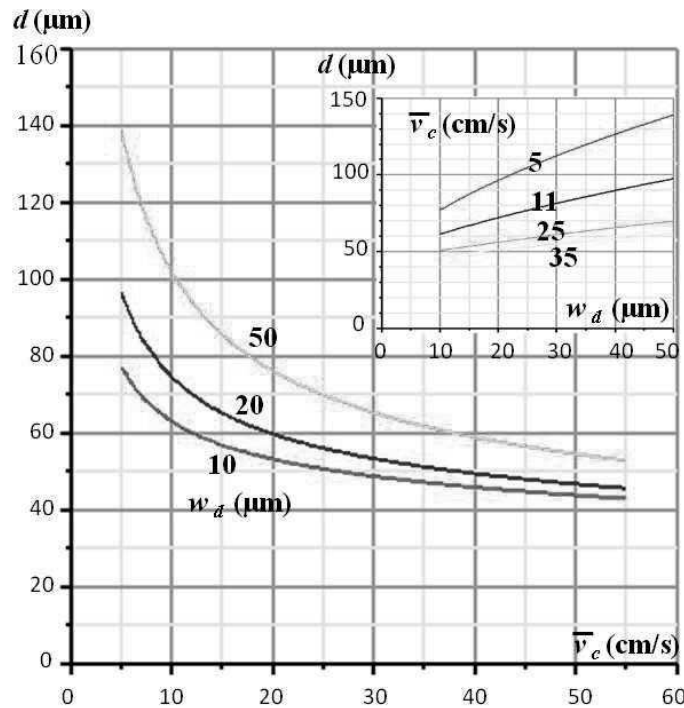


FIGURE 3.14 – Simulation du diamètre de la gouttelette générée en fonction de la largeur du microcanal de la phase dispersée ( $w_d$ ), avec  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$  et  $\alpha = 0,5$ .

On note que les autres modèles analytiques présents dans la littérature [37, 35, 53, 54] n'ont pas prédit la dépendance observée avec  $w_d$  comme le montre la figure 3.15. Même si les modèles de la littérature sont ajustés, il est clair que la forme de la dépendance en fonction de  $\bar{v}_c$  reste très différente de celle obtenue avec notre modèle. Apparemment, dans ces modèles, la durée de la troisième phase du gonflement est généralement trop courte parcequ'ils ignorent les effets de la viscosité.

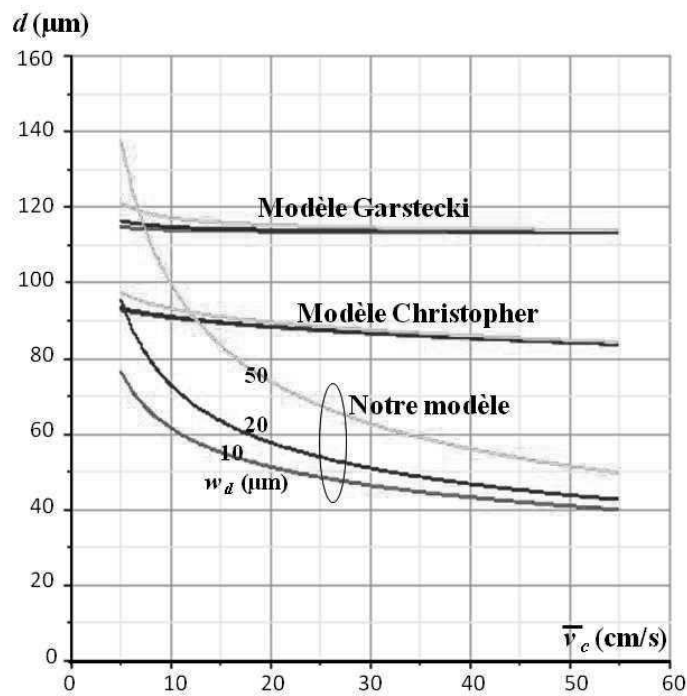


FIGURE 3.15 – Diamètre de la gouttelette générée en fonction de la largeur du microcanal de la phase dispersée ( $w_d$ ) : comparaison entre notre modèle analytique et les modèles proposés par Garstecki et al. [53] et Christopher et al. [54].

### 3.8.3/ LARGEUR DU MICROCANAL DE LA PHASE CONTINUE

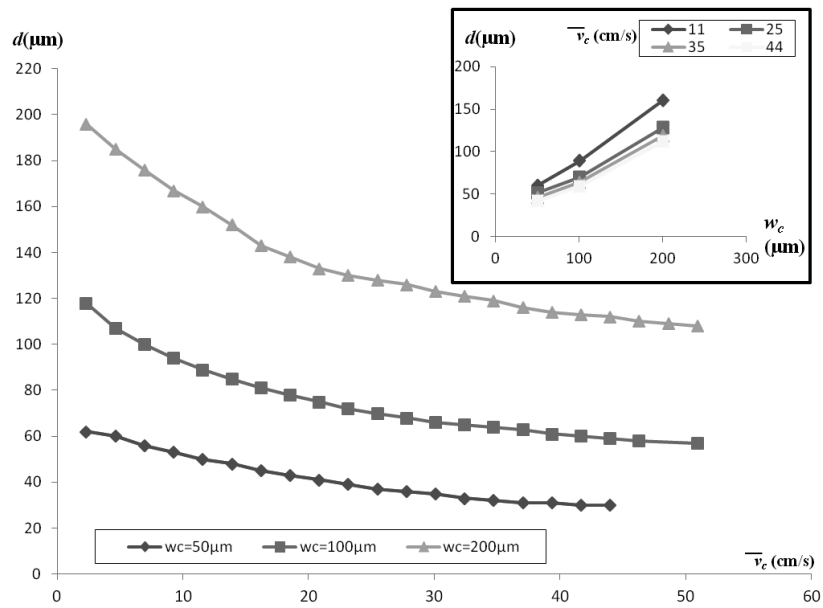
De la même façon que précédemment, nous allons expliquer l'effet de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  sur la taille de la gouttelette générée en régime dripping, en se basant sur le modèle du paragraphe 3.6.

Pour cela, nous avons changé  $w_c$  ( $w_c = 50 \mu\text{m}$ ,  $100 \mu\text{m}$  et  $200 \mu\text{m}$ ) tout en fixant  $w_d$  à  $20 \mu\text{m}$  (figure 3.11).

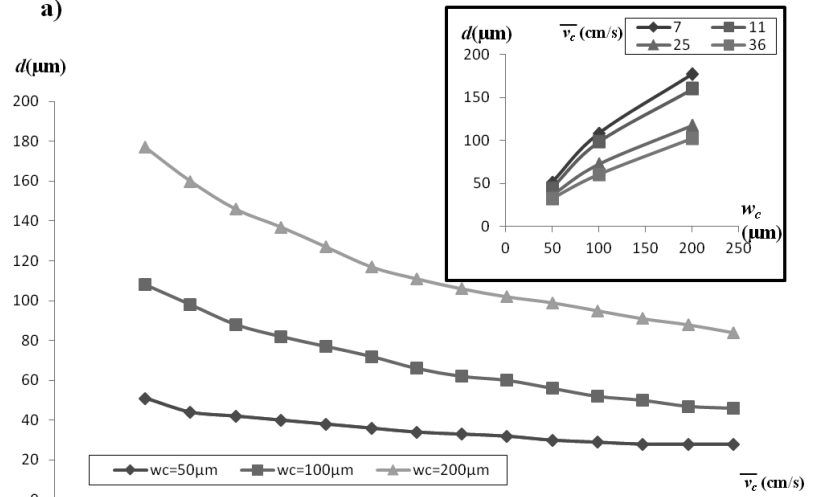
Comme  $w_d$  et  $\bar{v}_d$  sont maintenues constantes, quand  $\bar{v}_c$  est fixe, la taille de la gouttelette générée diminue quand la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  diminue (figure 3.16).

Durant le stade II, quand la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  diminue à une vitesse constante de la phase continue, le rayon  $r$  diminue et ainsi la surface  $S$  obtenue à la fin du stade II diminue (figure 3.17).

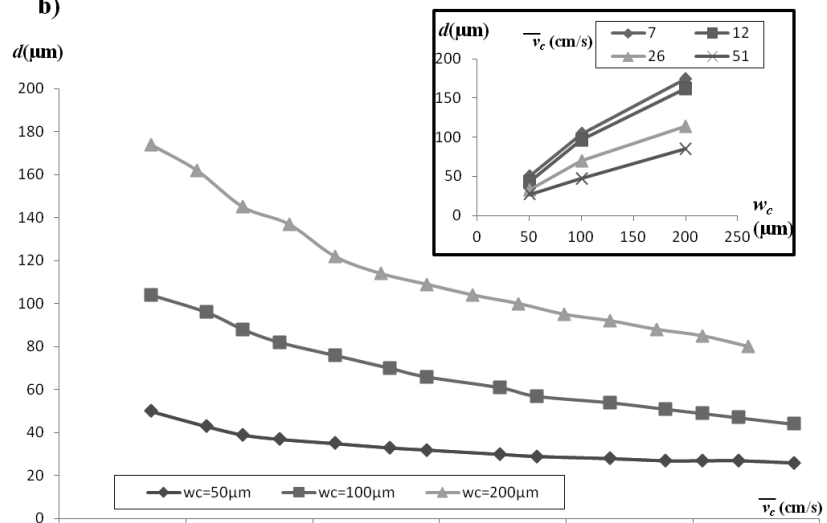




a)



b)



c)

FIGURE 3.16 – Effet de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  sur le diamètre  $d$  de la gouttelette, avec  $w_d = 20\mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5\text{ cm/s}$  et  $h = 72\mu\text{m}$  (a),  $h = 46\mu\text{m}$  (b),  $h = 23\mu\text{m}$  (c).

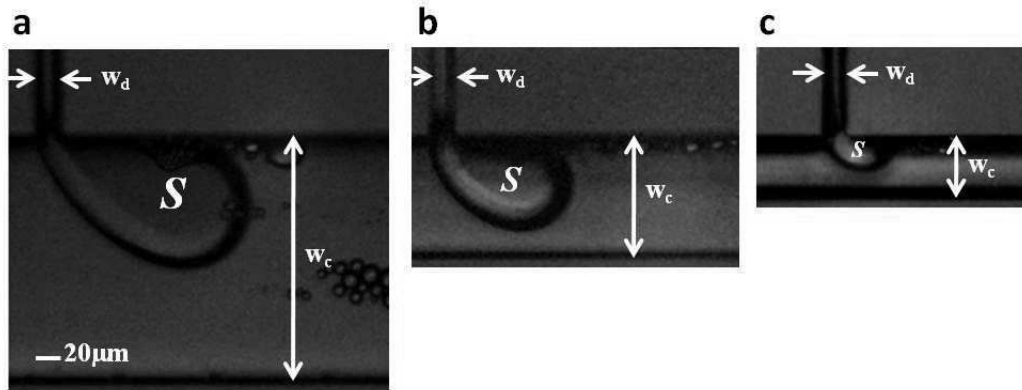


FIGURE 3.17 – Effet de la largeur du microcanal de la phase continue sur la section  $S$  de la gouttelette à la fin du stade II, avec  $\bar{v}_d = 1,5$  cm/s,  $\bar{v}_c = 7,25$  cm/s,  $w_d = 20$   $\mu\text{m}$ ,  $h = 46$   $\mu\text{m}$  et  $w_c = 200$   $\mu\text{m}$  (a),  $w_c = 100$   $\mu\text{m}$  (b),  $w_c = 50$   $\mu\text{m}$  (c).

Durant le stade III, le temps de détachement  $t_{\text{neck}}$  diminue puisqu'il est fonction de  $r$ . Étant donné que la vitesse et la largeur du microcanal de la phase dispersée sont constantes, cela conduit donc à une diminution du gonflement de la gouttelette  $s$  au stade III.

Donc la surface finale de la gouttelette ( $S + s$ ) diminue et par conséquent le diamètre final diminue.

Le comportement observé est de nouveau similaire à ce qui est prédit par le modèle (figure 3.18).

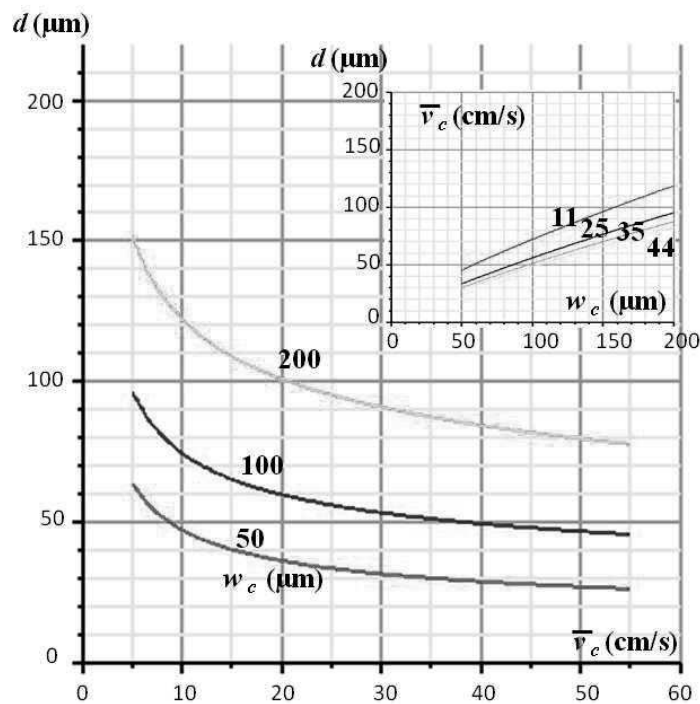


FIGURE 3.18 – Simulation du diamètre de la gouttelette générée en fonction de la largeur du microcanal de la phase continue ( $w_c$ ), avec  $w_d = 20$   $\mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5$  cm/s et  $\alpha = 0,5$ .

### 3.8.4/ PROFONDEUR DES MICROCANAU

Dans nos expériences et conformément au modèle proposé (paragraphe 3.6), le diamètre de la gouttelette générée présente une très faible dépendance avec la profondeur  $h$  des microcanaux.

Ainsi, à des valeurs constantes de  $w_c$ ,  $w_d$ ,  $\bar{v}_c$  et  $\bar{v}_d$ , le diamètre  $d$  des gouttelettes est relativement inchangé quand la profondeur  $h$  des microcanaux varie.

La figure 3.19 représente les diamètres  $d$  des gouttelettes générées en fonction de la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  tout en changeant la profondeur  $h$  des microcanaux ( $h = 23 \mu\text{m}$ ,  $46 \mu\text{m}$  et  $72 \mu\text{m}$ ).

Dans la partie (a), nous avons fixé  $w_c$  à  $100 \mu\text{m}$  tout en changeant  $w_d$  ( $w_d = 10 \mu\text{m}$  et  $50 \mu\text{m}$ ). Nous remarquons que pour une valeur constante de  $w_d$ , les points sont concentrés autour d'un même graphe pour les trois profondeurs. De même dans la partie (b), nous avons fixé  $w_d$  à  $20 \mu\text{m}$  tout en changeant  $w_c$  ( $w_c = 50 \mu\text{m}$  et  $100 \mu\text{m}$ ). Nous remarquons que pour une valeur constante de  $w_c$ , les points sont concentrés autour d'un même graphe pour les trois profondeurs.

Ces observations expérimentales montrent la faible dépendance du diamètre de la gouttelette générée en régime dripping avec les profondeurs des microcanaux.

### 3.8.5/ VITESSE DE LA PHASE CONTINUE

Dans le même dispositif microfluidique ( $h$ ,  $w_d$  et  $w_c$  fixes), la taille de la gouttelette diminue quand la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  augmente. Ce phénomène observé par plusieurs auteurs [38, 67, 39] peut être expliqué de la manière suivante : durant le stade II, la force de tension qui tient la gouttelette est constante puisqu'elle est une fonction de la tension interfaciale  $\sigma$  et de la profondeur  $h$  du microcanal qui sont maintenues fixes. Par conséquent, la force de pression nécessaire pour détacher la gouttelette est également constante. Ainsi, comme la vitesse de la phase continue augmente,  $r$  diminue donc  $S$  diminue.

Durant le stade III, le temps de détachement  $t_{\text{neck}}$  diminue puisqu'il est fonction de  $r$ . Étant donné que la vitesse et la largeur du microcanal de la phase dispersée sont constantes, cela conduit donc à une diminution du gonflement  $s$  de la gouttelette au stade III.

Donc la surface finale de la gouttelette ( $S + s$ ) diminue et par conséquent le diamètre final de la gouttelette générée diminue (figure 3.20).

### 3.8.6/ VITESSE DE LA PHASE DISPERSÉE

Afin d'étudier l'effet de la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  sur la taille des gouttelettes générées, des essais ont été faits sur le même dispositif microfluidique ( $h$ ,  $w_d$ ,  $w_c$  constantes). Les résultats expérimentaux montrent que le diamètre  $d$  de la gouttelette diminue quand la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  diminue (figure 3.21).

La dépendance entre le diamètre de la gouttelette et la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  en régime dripping, est prédite par les équations décrites dans les paragraphes précédents. Ainsi, à la fin du stade II, la surface  $S$  est constante puisqu'elle dépend uniquement de la vitesse et de la largeur du microcanal de la phase continue qui sont maintenues constantes.

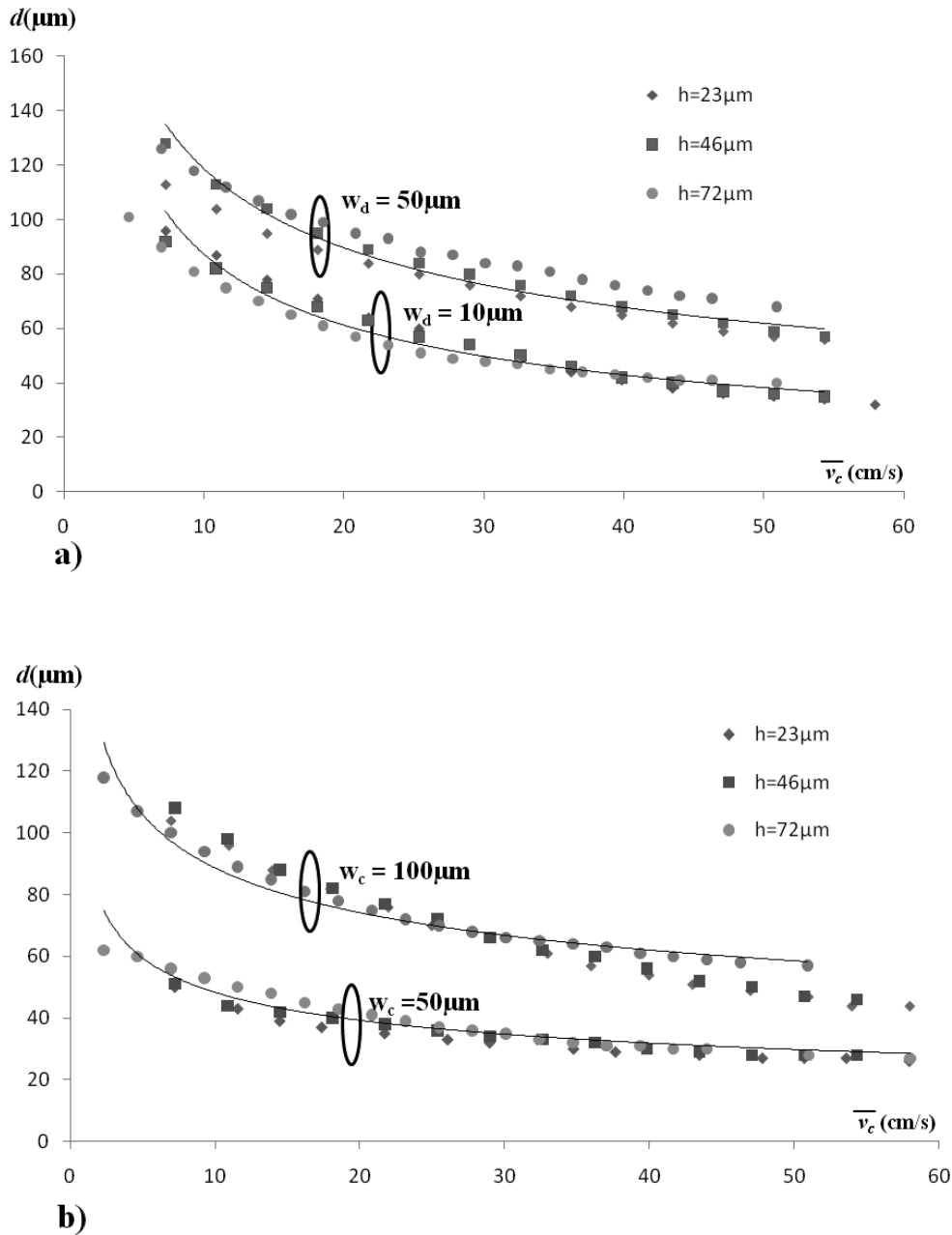


FIGURE 3.19 – Effet de la profondeur  $h$  du microcanal sur le diamètre  $d$  de la gouttelette, avec  $\bar{v}_d = 1,5$  cm/s,  $w_c = 100$   $\mu\text{m}$  (a) et  $w_d = 20$   $\mu\text{m}$  (b).

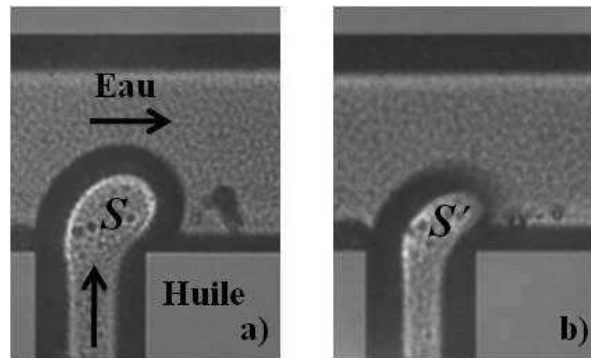


FIGURE 3.20 – Effet de la vitesse de la phase continue sur la section de la gouttelette à la fin du stade II :  $S > S'$ , avec  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_c = 14,5 \text{ cm/s}$  (a),  $\bar{v}_c = 25,4 \text{ cm/s}$  (b).

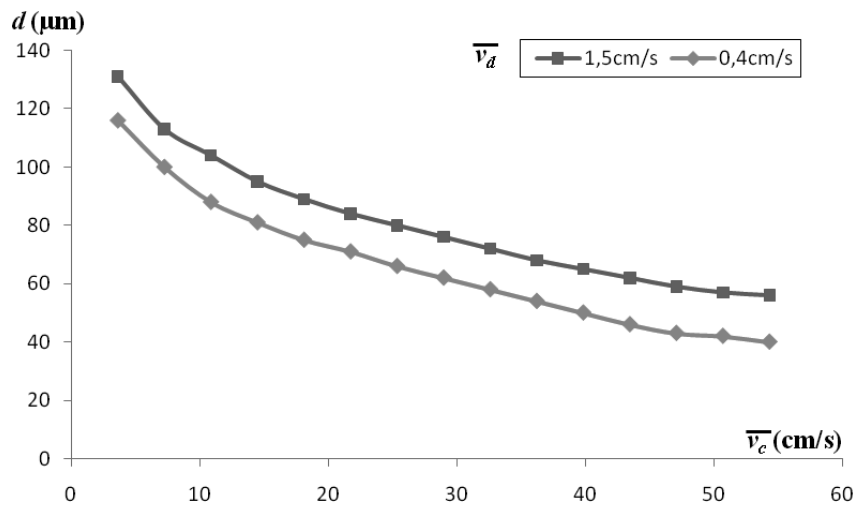


FIGURE 3.21 – Effet de la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  sur le diamètre  $d$  de la gouttelette, avec  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$  et  $h = 46 \mu\text{m}$ .

A la fin du stade III, le temps de cisaillement  $t_{\text{neck}} = \frac{r\mu_d}{\mu_c\bar{v}_c}$  est constant, le gonflement  $s$  de la gouttelette diminue quand  $\bar{v}_d$  diminue ( $s = t_{\text{neck}}\bar{v}_d w_d$ ), conduisant ainsi à une diminution de la taille finale de la gouttelette.

Il faut noter que dans certains cas particuliers, la taille de la gouttelette générée diminue en fonction de  $\bar{v}_d$  mais jusqu'à arriver à une vitesse limite de cette phase ( $\bar{v}_d(\text{critique})$ ) où elle reste constante quelque soit  $\bar{v}_d$  ou  $\bar{v}_c$ .

La figure 3.22 présente la variation du diamètre  $d$  de gouttelettes formées en fonction de la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  tout en changeant la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  pour le dispositif microfluidique ayant les dimensions suivantes :  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 10 \mu\text{m}$  et  $h = 72 \mu\text{m}$ .

Dans ce cas, le diamètre de la gouttelette diminue quand la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  diminue, uniquement pour des valeurs de  $\bar{v}_d$  qui varie entre 3 et 0,75 cm/s, alors qu'il reste constant pour des valeurs de  $\bar{v}_d$  qui varient entre 0,6 cm/s et 0,001 cm/s [107]. En effet, le régime de génération de gouttelettes change dramatiquement en fonction de la

vitesse de la phase dispersée, ainsi il est passé du régime dripping à un nouveau régime que nous avons appelé le régime balloon (figure 3.23). Ce nom vient du fait que la formation des gouttelettes dans ce régime ressemble au gonflement d'un ballon (discussion dans le chapitre 4).

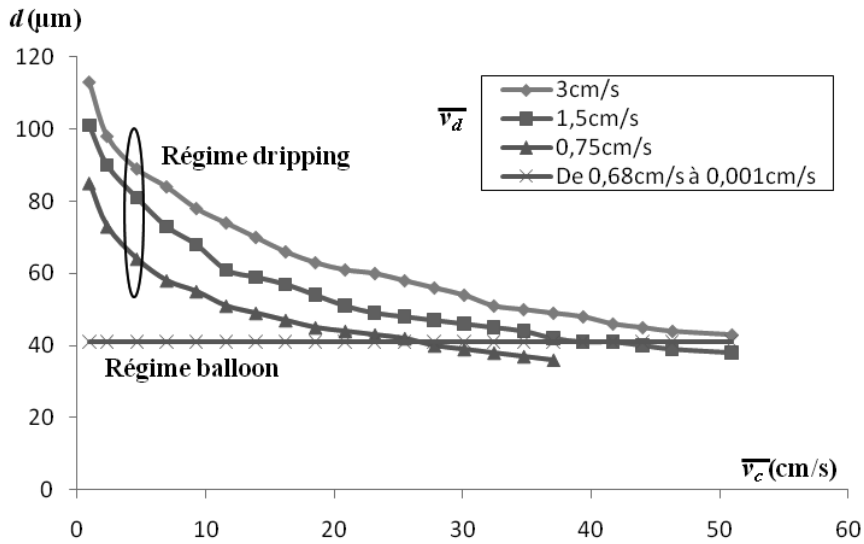


FIGURE 3.22 – Effet de la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  sur le diamètre  $d$  de la gouttelette, avec  $w_d = 10 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$  et  $h = 72 \mu\text{m}$ .

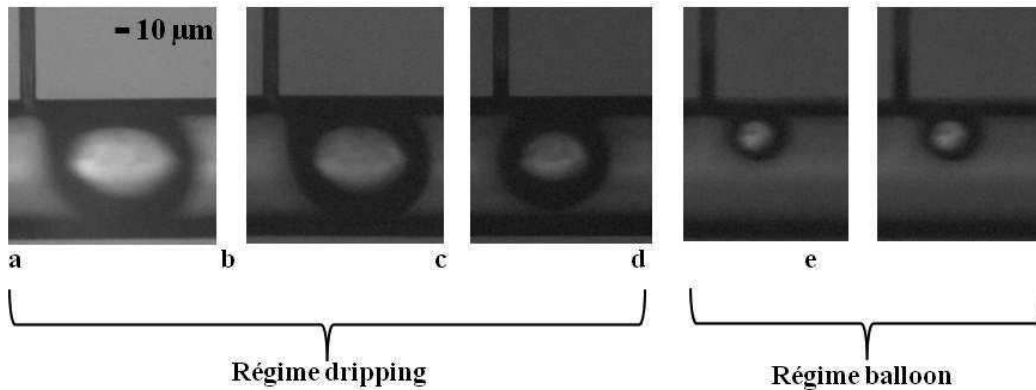


FIGURE 3.23 – Régimes de génération de gouttelettes en fonction de la vitesse de la phase dispersée : régime dripping (a, b et c) et régime balloon (d et e) avec  $w_d = 10 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $h = 72 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_c = 0,93 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_d = 3 \text{ cm/s}$  (a),  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$  (b),  $\bar{v}_d = 0,75 \text{ cm/s}$  (c),  $\bar{v}_d = 0,6 \text{ cm/s}$  (d) et  $\bar{v}_d = 0,001 \text{ cm/s}$  (e).

### 3.8.7/ CONCLUSION

Dans cette étude, nous avons montré que la taille des gouttelettes diminue quand la largeur du microcanal contenant la phase continue  $w_c$  diminue, quand la largeur du microcanal contenant la phase dispersée  $w_d$  diminue, quand la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  diminue et quand la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  augmente. Par contre, le diamètre de la gouttelette présente une très faible dépendance avec la profondeur  $h$  des microcanaux.

Donc on a pu vérifier l'idée de base liée au fait que l'évolution de la taille des gouttelettes/bulles dépend essentiellement de la géométrie de la jonction en T (figure 3.24).

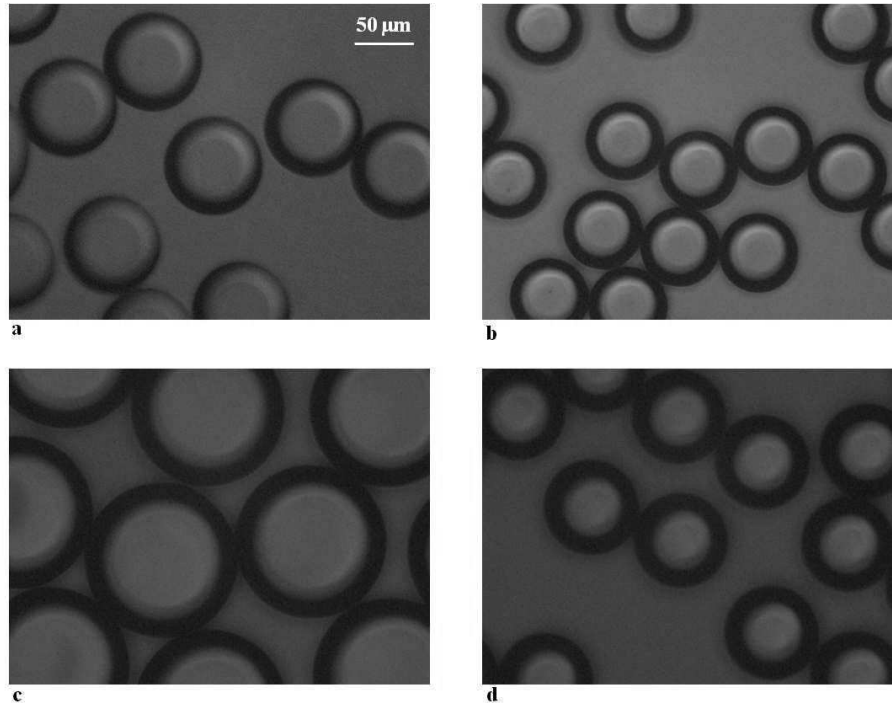


FIGURE 3.24 – Gouttelettes générées dans les dispositifs microfluidiques : effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  (a et b), avec  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ ,  $\bar{v}_c = 18 \text{ cm/s}$  et  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $d = 82 \mu\text{m}$  (a),  $w_d = 10 \mu\text{m}$ ,  $d = 68 \mu\text{m}$  (b); effet de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  (c et d), avec  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ ,  $\bar{v}_c = 22 \text{ cm/s}$  et  $w_c = 200 \mu\text{m}$ ,  $d = 127 \mu\text{m}$  (c),  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $d = 81 \mu\text{m}$  (d).

L'utilisation des dispositifs microfluidiques nous a permis de générer de gouttelettes dont la taille varie entre 200 et 25  $\mu\text{m}$ . Étant donné les limitations liées aux systèmes actuels et qui sont déjà mentionnées dans le paragraphe 2.5.9 du chapitre 2, et dans le but de générer des gouttelettes de plus petites tailles, nous sommes passés à l'utilisation des dispositifs à faible perte de charge.

### 3.9/ DISPOSITIFS À FAIBLE PERTE DE CHARGE POUR DE GOUTTELETTES DE PETITE TAILLE

#### 3.9.1/ INTRODUCTION

Dans le but de minimiser la perte de charge dans les dispositifs microfluidiques utilisés précédemment et ainsi pouvoir utiliser des jonctions de faible sections et diminuer la taille de gouttelettes générées, des nouveaux dispositifs ont été réalisés. L'idée est simple et consiste (comme nous avons expliqué dans le paragraphe 2.5.9 du chapitre 2) à avoir uniquement la partie active du système c'est-à-dire la jonction en T à faible profondeur. Les autres parties sont beaucoup plus profondes.

Dans la jonction en T, les microcanaux contenant la phase continue et dispersée ont la même largeur ( $w_d = w_c = 2 \mu\text{m}$ ,  $5 \mu\text{m}$  et  $10 \mu\text{m}$ ) et une profondeur de  $10 \mu\text{m}$ , alors que les parties profondes ont une profondeur de  $300 \mu\text{m}$ .

Vu la grande différence des profondeurs entre les microcanaux de la jonction en T et les autres canaux, lorsque nous imposons un débit par le pousse-seringue, nous ne récupérons pas la même quantité dans les deux types des microcanaux (profond de  $300 \mu\text{m}$  et peu profond de  $10 \mu\text{m}$ ). Ainsi, dans les microcanaux ayant les petites dimensions (T-jonction), nous avons un débit inférieur à celui affiché par le pousse-seringue. Cette différence est assurée par la présence des fuites.

Dans ce cas, pour savoir le débit effectif entrant dans les microcanaux de la jonction en T et qui va influencer sur la taille de la gouttelette générée par la suite, nous le calculons en considérant que la gouttelette est cylindrique (paragraphe 3.3).

En effet, et comme nous avons expliqué précédemment, le débit de la phase dispersée  $Q_d$  est lié à la fréquence de génération de gouttelettes par l'équation :  $Q_d = fV_g$  (équation 3.1).

La fréquence de génération de gouttelette est déterminée expérimentalement en comptant le nombre de gouttelettes générées par 1 seconde. D'autre part, nous mesurons le diamètre de la gouttelette formée, ce qui nous permet de calculer son volume  $V_g$  (équation 3.3) et par la suite de déterminer le débit de la phase dispersée  $Q_d$ .

Pour le débit de la phase continue  $Q_c$ , nous le supposons égal à celui de la phase dispersée. Les largeurs des microcanaux de deux phases sont identiques et parfaitement symétriques, ce qui permet de considérer que les fuites sont les mêmes de deux côtés.

### 3.9.2/ TAILLES DE GOUTTELETTES

L'utilisation de ces dispositifs microfluidiques à faible perte de charge nous a permis de surmonter les problèmes techniques liés au décollage de la colle au niveau des aiguilles (paragraphe 2.5.9), de diminuer l'ensemble de perte de charge dans les dispositifs microfluidiques (puisque seule la partie active du système c'est-à-dire la jonction en T a une faible dimension) et donc de générer des gouttelettes de plus petite taille. Ainsi nous avons pu descendre en échelle et générer des gouttelettes ayant un diamètre de  $5 \mu\text{m}$  environ (figure 3.25).

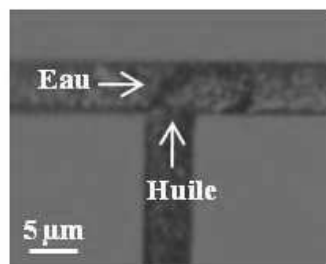


FIGURE 3.25 – Génération de gouttelettes d'huile dans l'eau dans les dispositifs à faible perte de charge, avec  $d = 8 \mu\text{m}$ ,  $w_c = w_d = 5 \mu\text{m}$  et  $h = 10 \mu\text{m}$ .



### 3.9.3/ ARRANGEMENT DE GOUTTELETTES

Dans les premiers dispositifs réalisés et comme nous pouvons remarquer dans la figure 3.24, les gouttelettes sont distribuées d'une façon aléatoire dans le réservoir de stockage.

Dans le but d'étudier l'arrangement de gouttelettes après leur génération c'est-à-dire la façon avec laquelle elles seront stockées dans le réservoir, plusieurs types des canaux de sortie ont été réalisés dans les dispositifs à faible perte de charge comme le montre la figure 3.26.

La division progressive des canaux de sortie a pour but d'assembler les gouttelettes dans le réservoir d'une manière bien ordonnée contrairement à leur arrangement dans les cas précédents.

Mais l'idée de base pour l'arrangement de gouttelettes dans le réservoir et sa bonne distribution dans ce dernier n'a pas été vérifiée. En effet, les gouttelettes générées ont été bloquées à l'entrée du réservoir. Cela est dû essentiellement à la grande différence entre la vitesse d'écoulement de l'eau dans le microcanal de la phase continue et sa vitesse dans le réservoir. Ainsi, par exemple pour un débit de la phase continue  $Q_c = 1 \mu\text{L}/\text{min}$ , la vitesse d'écoulement d'eau dans le microcanal de la phase continue (pour une section (largeur  $\times$  profondeur =  $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ )) est de l'ordre de  $16 \text{ cm/s}$  (sans considérer les fuites), alors qu'elle est de l'ordre de  $0,08 \text{ cm/s}$  dans le réservoir à faible profondeur ( $2000 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ ), et de  $0,0028 \text{ cm/s}$  dans le réservoir le plus profond ( $2000 \mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$ ) (figure 3.27). Cette chute de vitesse empêche la gouttelette de se déplacer dans le réservoir.

Pour améliorer ce comportement, des entrées consacrées à la phase continue peuvent être créées dans le réservoir. Elles servent à déplacer les gouttelettes bloquées en passant un courant d'eau supplémentaire dans le réservoir. L'eau ajoutée va uniquement jouer le rôle de transporteur de gouttelettes. D'autres améliorations peuvent aussi être introduites dans le système comme par exemple faire des passages progressives sous forme d'un V entre les microcanaux profonds et les microcanaux à faibles dimensions, pour avoir un meilleur mouillage de leurs parois.

## 3.10/ CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau en régime dripping en utilisant la configuration de la jonction en T. La simulation numérique et les résultats expérimentaux ont montré que le diamètre de la gouttelette est une fonction des largeurs des microcanaux des phases continue et dispersée ( $w_c$  et  $w_d$  respectivement), et des vitesses de deux phases ( $\bar{v}_c$  et  $\bar{v}_d$ ), alors qu'il ne présente pas une dépendance importante avec la profondeur  $h$  des microcanaux.

Les dispositifs microfluidiques préparés nous ont permis de générer de gouttelettes dont la taille varie dans une large gamme allant de  $5$  à  $200 \mu\text{m}$ . Dans un même dispositif microfluidique, nous avons montré qu'en moyenne la différence entre la plus petite taille  $d_{min}$  et la plus grande taille  $d_{max}$  de la gouttelette est de l'ordre de 2-3 fois (table 3.7). Cela présente une gamme intéressante pour des systèmes accordables réalisés en changeant uniquement la taille de gouttelettes/bulles (par changement des vitesses de phases) sans aucune modification de la géométrie du système microfluidique.

Enfin, il faut noter que les vitesses de la phase continue utilisées correspondent à des nombres capillaires de la phase continue  $Ca_c$  qui varient entre  $2 \cdot 10^{-4}$  et  $6 \cdot 10^{-3}$ . Par

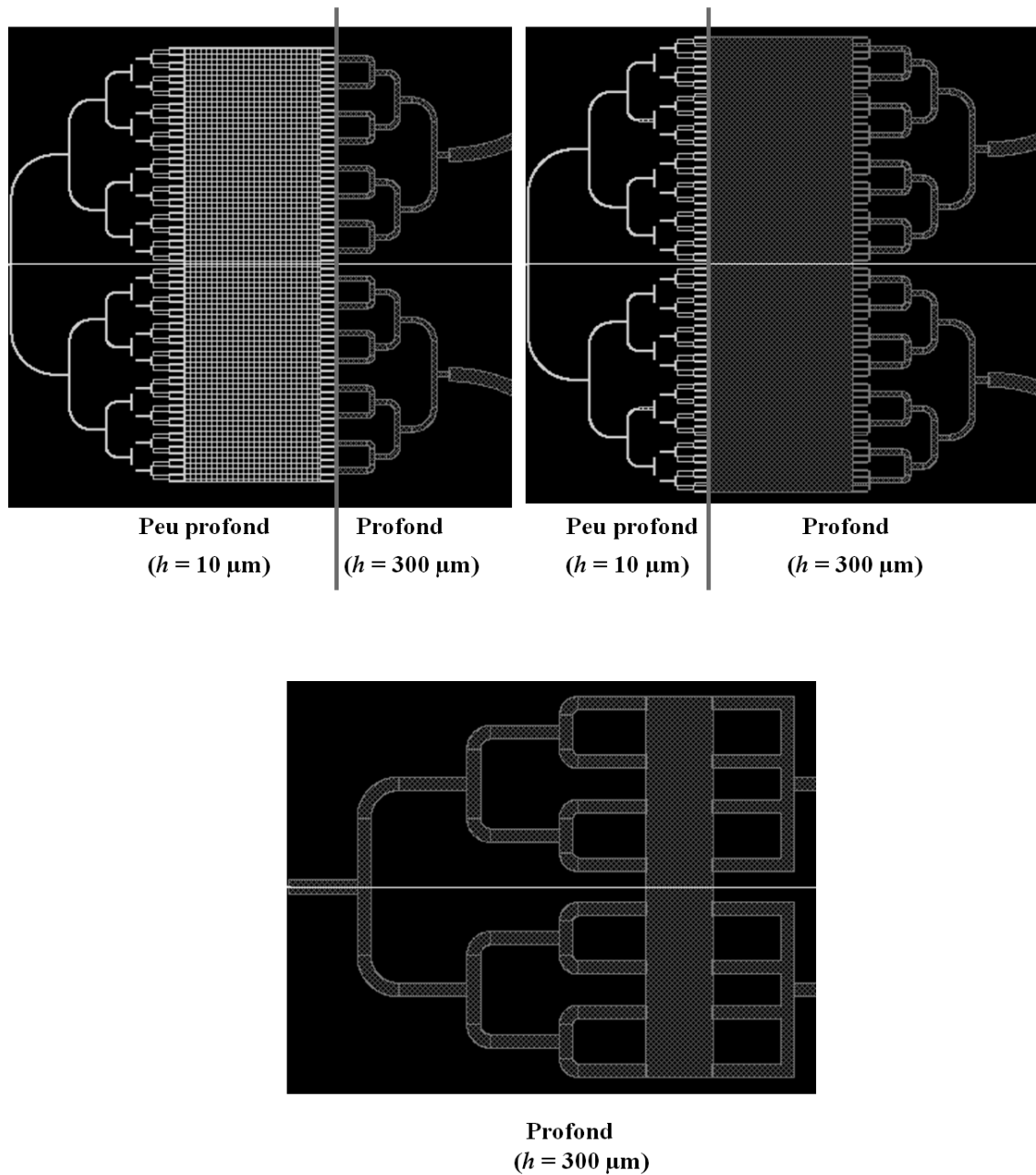


FIGURE 3.26 – Différents types des canaux de sortie dans les dispositifs microfluidiques à faible perte de charge intégrés sur silicium, avec les parties profondes ont une profondeur  $h = 300 \mu\text{m}$  et les moins profondes ont une profondeur  $h = 10 \mu\text{m}$  qui est égale à celle des microcanaux de la jonction en T.

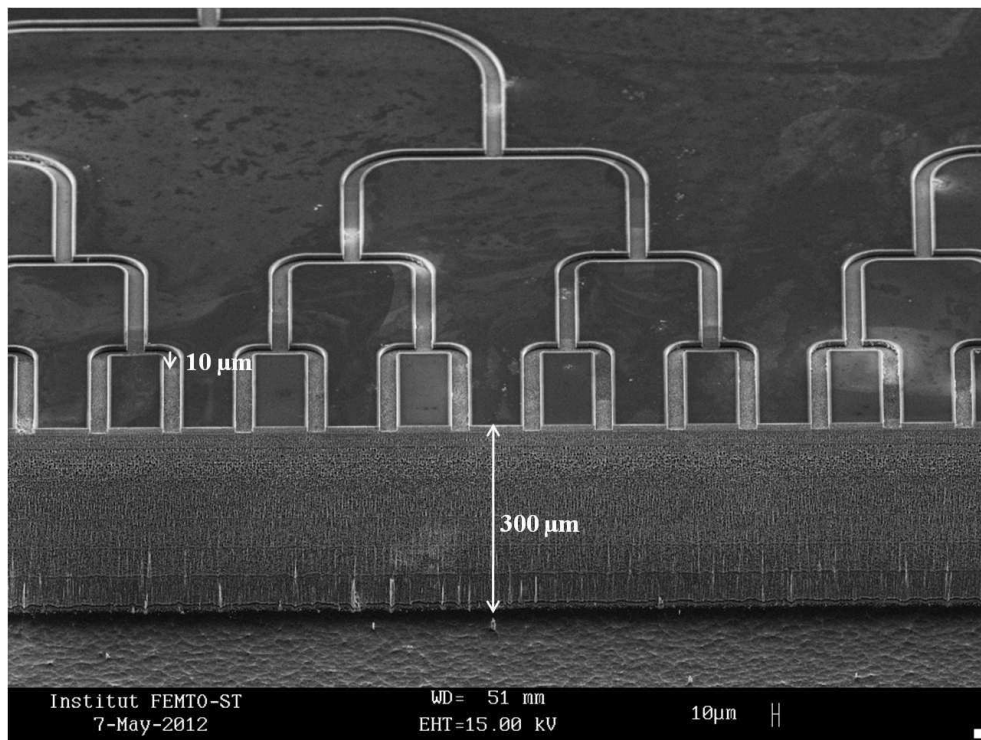


FIGURE 3.27 – Photo MEB d’un dispositif à double profondeur montrant la grande différence de dimension entre les microcanaux et le réservoir de stockage : faible profondeur  $h = 10 \mu\text{m}$  et grande profondeur  $h = 300 \mu\text{m}$ .

|                            |                        |     |     |     |     |
|----------------------------|------------------------|-----|-----|-----|-----|
| système microfluidique     | $w_c(\mu\text{m})$     | 200 | 100 | 100 | 100 |
|                            | $w_d(\mu\text{m})$     | 20  | 50  | 50  | 10  |
|                            | $h(\mu\text{m})$       | 23  | 46  | 72  | 72  |
| Diamètre de la gouttelette | $d_{max}(\mu\text{m})$ | 174 | 128 | 154 | 101 |
|                            | $d_{min}(\mu\text{m})$ | 80  | 57  | 52  | 46  |

TABLE 3.7 – Diamètres minimal et maximal de la gouttelette générée dans des systèmes microfluidiques de géométries différentes.

comparaison avec la littérature [49, 53, 50, 57, 108], ces valeurs de  $Ca_c$  correspondent plus au régime squeezing, mais dans notre cas l’utilisation de l’eau comme phase continue (liquide à faible viscosité), ainsi que l’utilisation d’une huile de silicone spéciale donnant une valeur élevée de la tension interfaciale eau-huile (100 mN/m) comme phase dispersée explique les valeurs relativement faibles de  $Ca_c$ . Le régime squeezing dans nos cas apparaît à des valeurs encore plus faible de  $Ca_c < 5 \cdot 10^{-5}$ .

Ces observations expérimentales nous permettent de dire que le nombre capillaire de la phase continue ne peut prédire le régime de génération de gouttelettes que dans un même système microfluidique et sa valeur précise n’est pas vraiment significative comme nous avons déjà montré dans le paragraphe 1.4.3.4 du chapitre 1. Ainsi, on peut passer du régime dripping au régime squeezing en contrôlant le nombre capillaire de la phase continue, mais dans un même système microfluidique, cela revient à contrôler la vitesse de la phase continue.



# GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES EN RÉGIME BALLOON

## 4.1/ INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous présentons un nouveau régime de génération de gouttelettes dans la jonction en T que nous avons appelé le régime balloon [106]. Nous montrons l'effet de la géométrie des microcanaux (largeur et profondeur), ainsi que celui des vitesses des deux phases sur la taille de la gouttelette générée, et nous proposons un mécanisme de formation des gouttelettes basé sur la stabilité de leur forme cylindrique pour expliquer les particularités de ce régime de génération.

## 4.2/ CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

Les mêmes dispositifs microfluidiques que ceux utilisés précédemment pour générer de gouttelettes dans le régime dripping ont été utilisés pour leur génération en régime balloon (figure 3.11). La vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  et de la phase continue  $\bar{v}_c$  ont été changées dans une large gamme :  $0,001 < \bar{v}_d < 0,6$  cm/s et  $0,05 < \bar{v}_c < 50$  cm/s.

Dans nos expériences, la plus petite seringue utilisée avait une capacité de 1 mL. Dans ce cas là, le débit imposé par le pousse seringue ne peut pas descendre au dessous de 0,0484  $\mu\text{L}/\text{min}$  (annexe A).

Dans le but de surmonter ces limitations liées au pousse-seringue et de descendre davantage au niveau des débits de la phase dispersée et par conséquent au niveau des vitesses de cette phase, des fuites ont été induites dans le système microfluidique. Elles consistent à placer un robinet à l'entrée du dispositif, ce qui permet de réaliser des fuites en se basant sur le principe de la résistance hydraulique. En effet, le liquide va plutôt passer du côté où cette résistance est moins importante, mais tout en laissant passer une petite quantité dans le côté du dispositif.

Dans ce cas, le débit de la phase dispersée  $Q_d$  entrant dans le dispositif est inconnu, mais nous pouvons le calculer de la même manière que le calcul effectué dans le paragraphe 3.9.1 du chapitre 3.

Pour des débits  $> 0,0484$   $\mu\text{L}/\text{min}$ , nous avons comparé les débits imposés par le pousse-seringue et les débits calculés. Les résultats montrent que les valeurs obtenues dans les deux cas sont identiques, ce qui prouve la fiabilité de cette méthode de calcul.

Il faut noter qu'il existe dans le marché des seringues dont la capacité est beaucoup plus petite que celle utilisée dans notre cas. La taille de ces seringues peut atteindre  $1 \mu\text{L}$  et même moins. Dans ce cas, le débit minimal imposé par le pousse seringue peut être de l'ordre de  $0,0001 \mu\text{L}/\text{min}$  (annexe A). Nous n'avons pas choisi cette solution, car la manipulation avec des seringues de cette taille est très délicate, et le débit imposé, dans ce cas, n'est pas fiable vu le mode de fonctionnement (par pas) du pousse-seringue. Donc le débit effectif entrant dans le système n'est pas vraiment connu et pour le déterminer, nous devons le calculer, cela revient donc à l'utilisation des fuites comme solution pour descendre en débit.

### 4.3/ MÉCANISME DE FORMATION DES GOUTTELETTES EN RÉGIME BALLOON

La gouttelette d'huile dans l'eau est générée à l'intersection des deux microcanaux en prenant une forme circulaire, puis elle se déplace dans le microcanal de la phase continue dans le sens du courant d'eau (figure 4.1).

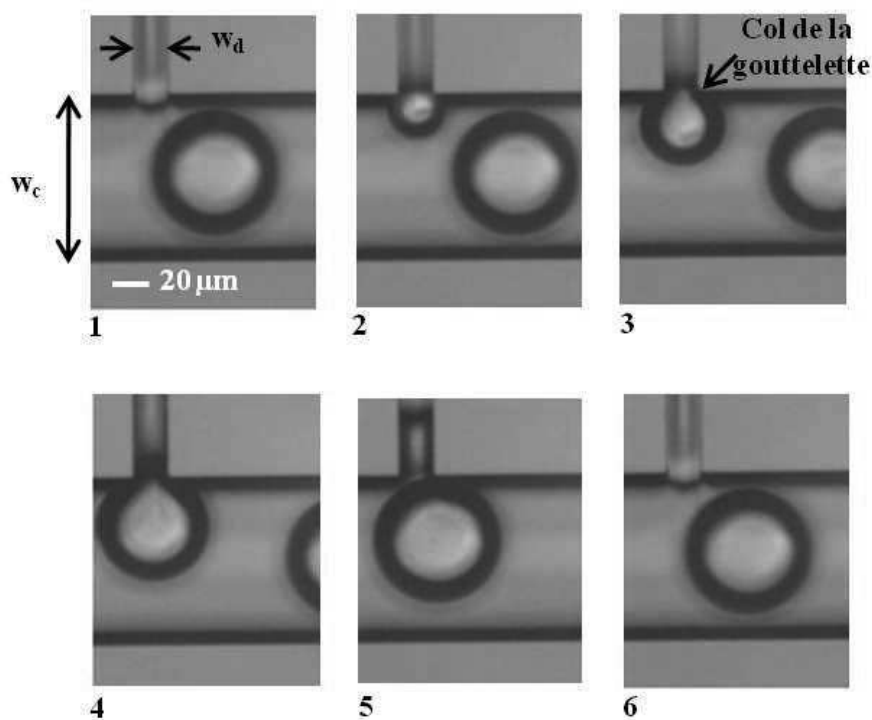


FIGURE 4.1 – Mécanisme de formation des gouttelettes dans le régime balloon.

En fait, le procédé de formation des gouttelettes commence au moment de l'arrivée de la phase dispersée à la jonction en T. Cette phase entre dans le microcanal de la phase continue et commence à former une gouttelette circulaire. Une étape similaire est présente dans le régime dripping (figure 4.2), mais contrairement à ce dernier, la gouttelette dans le régime balloon continue son gonflement avant son détachement, sans subir aucune déformation liée à la présence de la force de drag. L'hypothèse que nous avons faite sur l'origine de ce comportement est qu'il est lié à la stabilité de la forme cylindrique des gouttelettes.

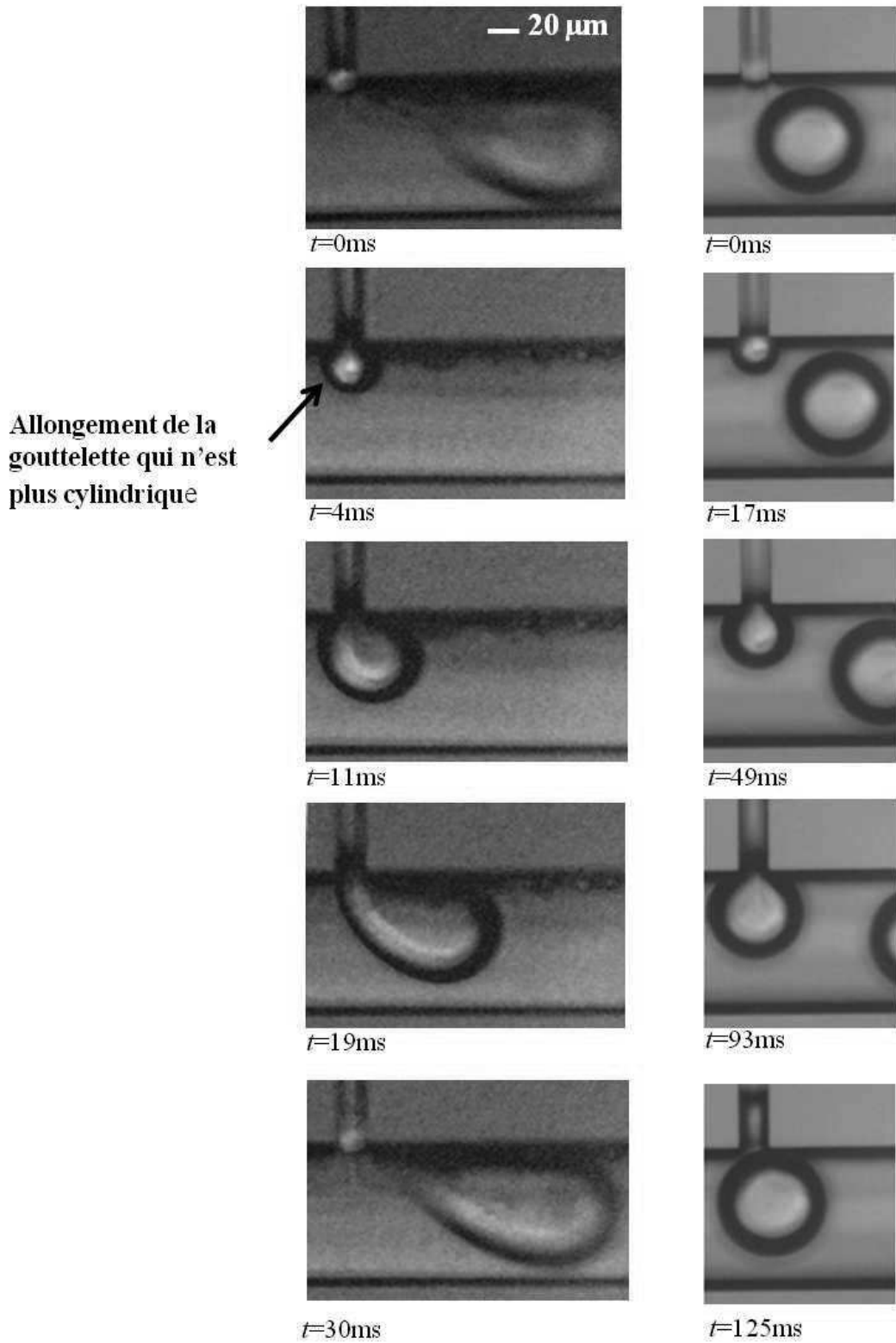


FIGURE 4.2 – Comparaison entre le procédé de formation des gouttelettes dans le régime dripping (gauche) et le régime balloon (droite) avec  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$  et  $h = 46 \mu\text{m}$ .

L'arrivée de la phase dispersée à des vitesses relativement faibles ne déforme pas la gouttelette qui conserve sa forme circulaire tout au long de sa formation, ceci n'est pas le cas dans le régime dripping où la gouttelette déformée par l'arrivée du liquide de la phase dispersée ne peut pas résister aux forces latérales exercées par le courant d'eau, ce qui conduit à sa déformation.

Au fur et à mesure que la gouttelette gonfle, l'angle  $\theta$  entre la gouttelette et les parois du microcanal de la phase continue diminue. En raison de la continuité de l'interface entre l'huile et l'eau, cette diminution d'angle entraîne l'apparition d'un renflement d'eau sur les deux côtés du microcanal de la phase dispersée (figure 4.3). Ce phénomène est également visible sur la partie 3 de la figure 4.1, comme une augmentation de la longueur du col des gouttelettes (partie sombre). Quand les renflements latéraux d'eau se rencontrent enfin dans le microcanal de la phase dispersée pour  $\theta = \theta_{min}$ , la gouttelette se détache. Cet angle  $\theta_{min}$  dépend essentiellement de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$ . D'une certaine manière le mécanisme proposé ressemble à un phénomène d'instabilité capillaire forcée. Quand la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  est plus petite, les renflements d'eau se rencontrent plus tôt dans le microcanal d'huile, l'angle  $\theta_{min}$  est plus grand conduisant ainsi à la génération d'une gouttelette de plus petite taille.

L'eau transporte enfin la gouttelette dans le microcanal de la phase continue et un nouveau cycle de génération de gouttelettes commence.

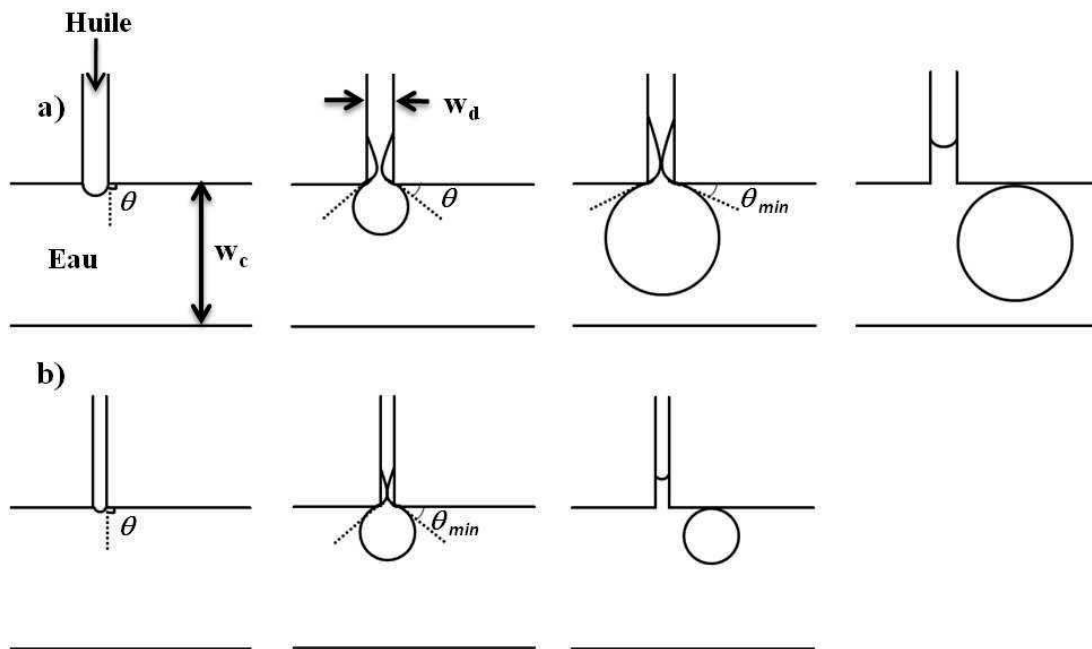


FIGURE 4.3 – Schéma du mécanisme de détachement de la gouttelette dans le régime balloon avec  $w_c = 100 \mu\text{m}$  et  $w_d = 20 \mu\text{m}$  (a),  $w_d = 10 \mu\text{m}$  (b).



#### 4.4/ EFFET DE LA GÉOMÉTRIE DU DISPOSITIF MICROFLUIDIQUE SUR LA GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES EN RÉGIME BALLOON

##### 4.4.1/ LARGEUR DU MICROCANAL DE LA PHASE DISPERSÉE

Dans le but de comprendre l'effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  sur la taille des gouttelettes dans le régime balloon, plusieurs essais ont été faits en fixant la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  à 100  $\mu\text{m}$  et en changeant  $w_d$  (table 4.1).

| $w_c$ ( $\mu\text{m}$ ) | $w_d$ ( $\mu\text{m}$ ) | $h$ ( $\mu\text{m}$ ) | Régime balloon | $d$ ( $\mu\text{m}$ ) |
|-------------------------|-------------------------|-----------------------|----------------|-----------------------|
| 100                     | 10                      | 46                    | oui            | 34                    |
| 100                     | 20                      | 46                    | oui            | 81                    |
| 100                     | 50                      | 46                    | –              | –                     |
| 100                     | 10                      | 72                    | oui            | 41                    |
| 100                     | 20                      | 72                    | oui            | 88                    |
| 100                     | 50                      | 72                    | –              | –                     |

TABLE 4.1 – Effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  sur le régime de génération de gouttelettes et sur leur tailles à des vitesses faibles de la phase dispersée (à des valeurs plus élevées de la vitesse de la phase dispersée, le régime dripping apparaît dans tous les cas).

Les expériences montrent qu'à  $h$  et  $w_c$  constantes, le diamètre  $d$  de la gouttelette générée augmente quand  $w_d$  augmente, mais quand  $w_d$  devient très large (pour  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ), on n'observe pas le régime balloon. Ce phénomène peut être expliqué de la façon suivante : quand  $w_d$  augmente,  $\theta_{min}$  diminue et la gouttelette formée est plus grande. Cependant, quand la largeur du microcanal de la phase dispersée devient très large, les renflements latéraux d'eau deviennent incapables de se rencontrer dans le microcanal d'huile avant que la gouttelette ne se déforme, ce qui conduit à l'apparition du régime dripping (Figure 4.4).

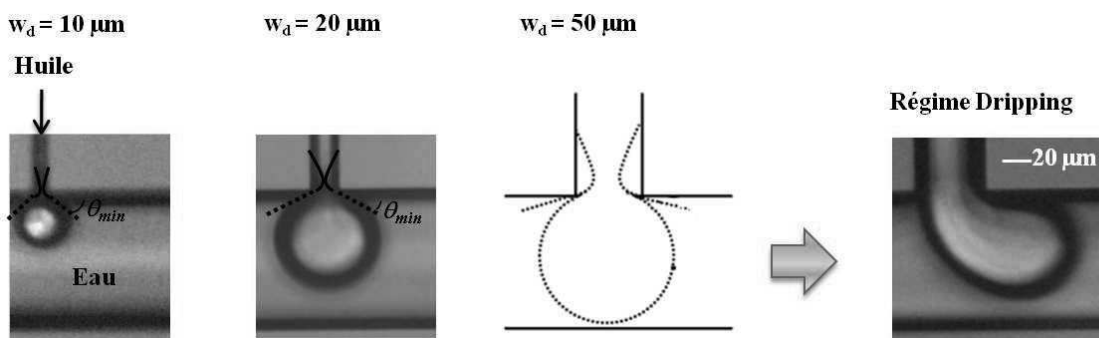


FIGURE 4.4 – Schéma représentant l'effet de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  sur le régime de génération de gouttelettes.

##### 4.4.2/ LARGEUR DU MICROCANAL DE LA PHASE CONTINUE

De même et dans le but de comprendre l'effet de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  sur la taille des gouttelettes dans le régime balloon, plusieurs essais ont été

faits en fixant la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  à 20  $\mu\text{m}$  et en changeant  $w_c$  (table 4.2).

| $w_d$ ( $\mu\text{m}$ ) | $w_c$ ( $\mu\text{m}$ ) | $h$ ( $\mu\text{m}$ ) | Régime balloon | $d$ ( $\mu\text{m}$ ) |
|-------------------------|-------------------------|-----------------------|----------------|-----------------------|
| 20                      | 50                      | 46                    | –              | –                     |
| 20                      | 100                     | 46                    | oui            | 81                    |
| 20                      | 200                     | 46                    | oui            | 81                    |
| 20                      | 50                      | 72                    | –              | –                     |
| 20                      | 100                     | 72                    | oui            | 88                    |
| 20                      | 200                     | 72                    | oui            | 88                    |

TABLE 4.2 – Effet de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  sur le régime de génération de gouttelettes et sur leur tailles à des vitesses faibles de la phase dispersée (à des valeurs plus élevées de la vitesse de la phase dispersée, le régime dripping apparaît dans tous les cas).

A  $h$  et  $w_d$  constantes, nous avons observé que pour  $w_c = 100 \mu\text{m}$  et  $200 \mu\text{m}$ , le diamètre de la gouttelette est constant. Cela nous permet de conclure que la taille de la gouttelette dans le régime balloon ne dépend pas de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  mais dépend essentiellement de la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$ . Mais il faut noter que pour  $w_c = 50 \mu\text{m}$ , nous n'avons pas observé le régime balloon. Dans ce dernier cas, le diamètre attendu de la gouttelette, dans le régime balloon, serait plus grand que la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$ . La gouttelette atteint ainsi la paroi supérieure du microcanal de la phase continue avant qu'elle puisse se détacher, se déforme et ainsi le régime dripping sera présent (Figure 4.5).

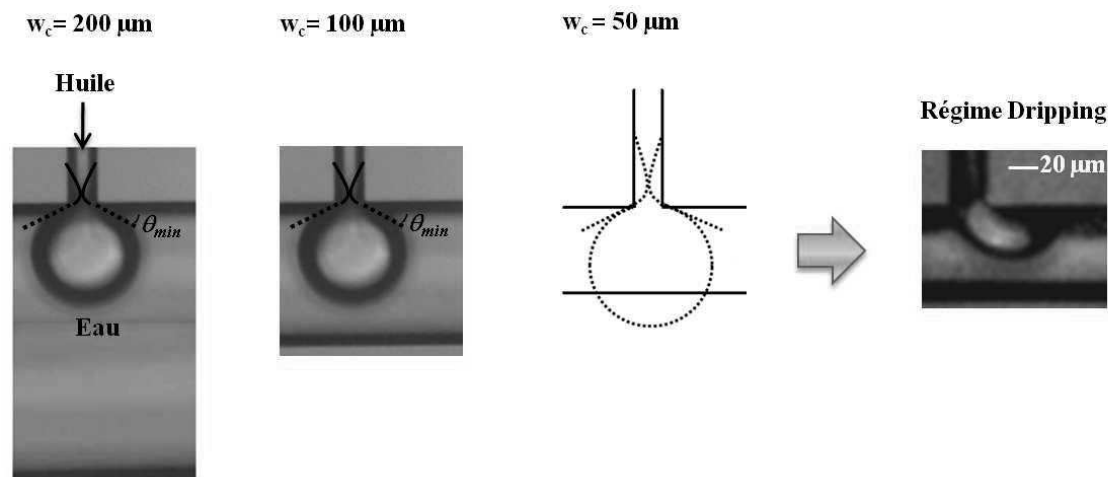


FIGURE 4.5 – Schéma représentant l'effet de la largeur du microcanal de la phase continue  $w_c$  sur le régime de génération de gouttelettes.

#### 4.4.3/ PROFONDEUR DES MICROCANaux

Dans le but de comprendre l'influence de la profondeur des microcanaux sur la taille de gouttelettes dans le régime balloon, différents dispositifs microfluidiques ayant différentes profondeurs ont été testés (table 4.3).

| $h$ ( $\mu\text{m}$ ) | $w_d$ ( $\mu\text{m}$ ) | $w_c$ ( $\mu\text{m}$ ) | Régime balloon | $d$ ( $\mu\text{m}$ ) |
|-----------------------|-------------------------|-------------------------|----------------|-----------------------|
| 23                    | 10                      | 100                     | –              | –                     |
| 46                    | 10                      | 100                     | oui            | 34                    |
| 72                    | 10                      | 100                     | oui            | 41                    |
| 23                    | 20                      | 100                     | –              | –                     |
| 46                    | 20                      | 100                     | oui            | 81                    |
| 72                    | 20                      | 100                     | oui            | 88                    |

TABLE 4.3 – Effet de la profondeur  $h$  des microcanaux sur le régime de génération de gouttelettes et sur leur tailles à des vitesses faibles de la phase dispersée (à des valeurs plus élevées de la vitesse de la phase dispersée, le régime dripping apparait dans tous les cas).

Les observations expérimentales montrent qu'à  $w_d$  et  $w_c$  constantes, le diamètre  $d$  de la gouttelette générée diminue légèrement quand  $h$  diminue. Ainsi comme nous l'avons expliqué avant, l'apparition du régime balloon est liée en premier lieu à la stabilité de la forme cylindrique des gouttelettes. Quand  $h$  diminue, la gouttelette diminue son diamètre  $d$  dans le but de conserver sa forme cylindrique stable tout en maintenant la contrainte de l'angle de contact en haut et en bas du microcanal de la phase continue. Quand  $h$  devient très petit, on ne peut pas observer le régime balloon puisque la gouttelette devient incapable de conserver une forme cylindrique stable. Le détachement est donc contrôlé par les forces de drag et le régime dripping est présent.

## 4.5/ EFFET DES CARACTÉRISTIQUES DES ÉCOULEMENTS SUR LA GÉNÉRATION DE GOUTTELETTES EN RÉGIME BALLOON

### 4.5.1/ VITESSE DE LA PHASE DISPERSÉE

La transition entre le régime dripping et le régime balloon est également contrôlée par la vitesse de la phase dispersée (paragraphe 3.8.5 du chapitre 3) [107]. En effet, il existe une valeur critique de la vitesse de cette phase au dessous de laquelle le régime balloon apparait ( $\bar{v}_d < \bar{v}_d(\text{critique})$ ).

Dans le régime balloon, la vitesse de la phase dispersée contrôle uniquement la fréquence  $f$  de génération de gouttelettes comme le montre la figure 4.6.

Cette fréquence peut être exprimée par l'équation 3.1 :  $f = \frac{Q_d}{V_g}$ , avec  $Q_d$  le débit de la phase dispersée et  $V_g$  le volume de la gouttelette. Nous savons que le débit de la phase dispersée est lié à la vitesse de la phase dispersée par l'équation :  $Q_d = hw_d\bar{v}_d$ . D'autre part, et comme la gouttelette a une forme cylindrique, son volume  $V_g$  est donné par :  $V_g = \frac{\pi d^2 h}{4}$ , cela nous permet d'écrire :

$$f = \frac{4w_d}{\pi d^2} \bar{v}_d \quad (4.1)$$

Étant donné que la taille de la gouttelette générée est constante dans le même dispositif microfluidique, donc le rapport  $\frac{4w_d}{\pi d^2}$  est constant. Cela nous permet de dire que l'équation 4.1 est une équation linéaire de type  $y = ax$  où  $a = \frac{4w_d}{\pi d^2}$  est la pente de la droite.

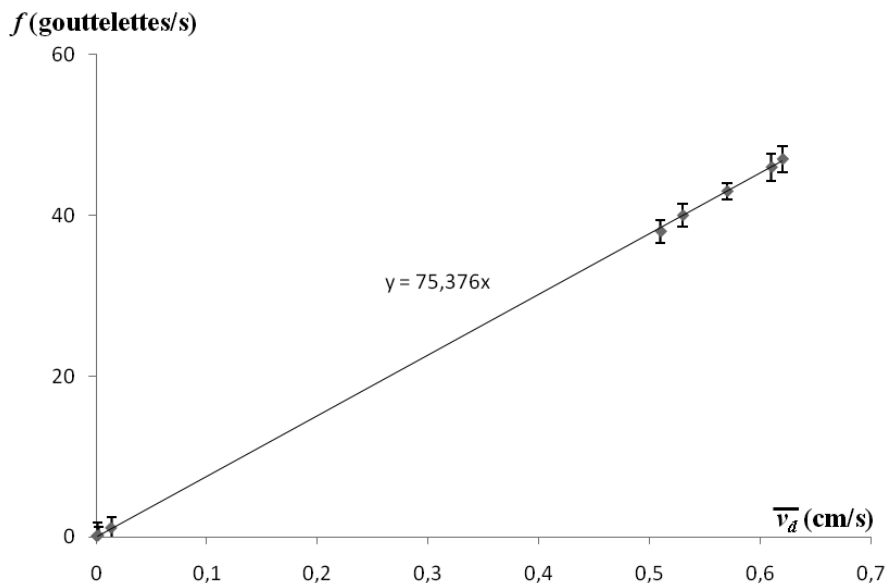


FIGURE 4.6 – Effet de la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  sur la fréquence de génération de gouttelettes dans le régime balloon, avec  $d = 41 \mu\text{m}$ ,  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 10 \mu\text{m}$  et  $h = 72 \mu\text{m}$ .

En se basant sur les résultats présentés dans la figure 4.6, nous pouvons déduire la valeur expérimentale de la pente  $a_e = 75,376 \text{ cm}^{-1}$ . D'autre part, le calcul de cette pente par l'équation 4.1 donne sa valeur théorique  $a_t = 75,743 \text{ cm}^{-1}$ .

L'écart entre les valeurs théorique et expérimentale est donné par :  $\frac{|a_e - a_t|}{a_t} \times 100 = 0,5 \%$ . Cet écart est faible, ce qui montre la fiabilité de l'équation 4.1 pour la détermination de la fréquence de génération, et confirme une fois de plus la forme cylindrique des gouttelettes générées.

Pour conclure, en régime balloon il est possible de prédire et d'une façon très précise la fréquence de génération de gouttelettes juste en contrôlant la vitesse de la phase dispersée.

#### 4.5.2/ VITESSE DE LA PHASE CONTINUE

Dans le régime balloon, et contrairement aux régimes de génération de gouttelettes connus, la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  n'a aucune influence sur la taille des gouttelettes formées.

La vitesse de la phase continue joue deux rôles principaux :

- Le transport de la gouttelette dans le microcanal contenant la phase continue.
- Le contrôle de la densité des gouttelettes dans le microcanal contenant la phase continue, c'est-à-dire la distance  $l$  entre deux gouttelettes consécutives.

Cette distance  $l$  peut être exprimée par l'équation :  $l = \frac{\bar{v}_c - df}{f}$ . La substitution de  $f$  par sa valeur donnée dans l'équation 4.1, nous permet d'écrire :

$$l = \frac{\pi d^2}{4} \left( \frac{\bar{v}_c}{\bar{v}_d w_d} - \frac{4}{\pi d} \right) \quad (4.2)$$

Dans le même dispositif microfluidique, le diamètre  $d$  de la gouttelette et la largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  sont constants, donc quand la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  est fixée, la distance  $l$  entre deux gouttelettes consécutives change quand la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  change.

La figure 4.7 montre la distance  $l$  entre deux gouttelettes consécutives observée dans le dispositif microfluidique ayant les dimensions suivantes :  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 20 \mu\text{m}$  et  $h = 46 \mu\text{m}$ . Dans ces cas, nous avons imposé (par le pousse-seringue) des vitesses relativement faibles de la phase continue, ce qui nous a permis de mesurer  $l$  facilement dans le microcanal de la phase continue.

La comparaison entre les valeurs expérimentales  $l_e$  (mesurées en se basant sur l'imagerie) et celles théoriques  $l_t$  (obtenues en les calculant par l'équation 4.2), est présentée dans la table 4.4.

| Essai | $\bar{v}_c$ (cm/s) | $l_e$ ( $\mu\text{m}$ ) | $l_t$ ( $\mu\text{m}$ ) | Écart % |
|-------|--------------------|-------------------------|-------------------------|---------|
| 1     | 0,12               | 65                      | 66                      | 1,5     |
| 2     | 0,1                | 44                      | 42                      | 4,8     |
| 3     | 0,085              | 25                      | 23                      | 8,7     |
| 4     | 0,065              | 0                       | 1                       | 1       |

TABLE 4.4 – Comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques des distances  $l$  entre deux gouttelettes consécutives.

La distance  $l$  entre deux gouttelettes consécutives diminue quand la vitesse de la phase continue  $\bar{v}_c$  diminue. Les écarts entre  $l_t$  et  $l_e$  (calculés comme suit :  $\frac{|l_e - l_t|}{l_t} \times 100$ ) sont faibles (<10%), donc les résultats obtenus expérimentalement sont en accord avec les résultats théoriques.

Dans les conditions expérimentales exprimées ci-avant, la distance  $l$  entre deux gouttelettes consécutives devient  $< 0 \mu\text{m}$ , quand les vitesses de la phase continue  $\bar{v}_c$  devient  $< 0,065 \text{ cm/s}$ . Dans ce cas, les gouttelettes commencent à s'arranger d'une façon à optimiser leur espace comme le montre la partie 5 de la figure 4.7.

#### 4.5.3/ TENSION INTERFACIALE

En utilisant les mêmes dispositifs microfluidiques, nous avons réalisé les mêmes expériences en remplaçant l'huile de silicone par l'huile de tournesol.

La viscosité cinématique de l'huile de tournesol est très proche de celle de l'huile de silicone, raison pour laquelle nous l'avons choisi afin d'avoir une comparaison plus facile en changeant uniquement le paramètre de la tension interfaciale. L'huile de tournesol a une tension interfaciale que nous avons mesuré à  $37 \text{ mN/m}$  (table 4.5).

| Huile              | Tension interfaciale<br>(mN/m) | Viscosité cinématique<br>(mm <sup>2</sup> /s) |
|--------------------|--------------------------------|---|
| Huile de tournesol | 37                             | 37  |
| Huile de silicone  | 100                            | 39  |

TABLE 4.5 – Propriétés physiques des huiles utilisées.

Les résultats expérimentaux ont montré que la taille et le régime de génération de gouttelettes ne sont pas influencés par le changement de la nature d'huile utilisée, et plus

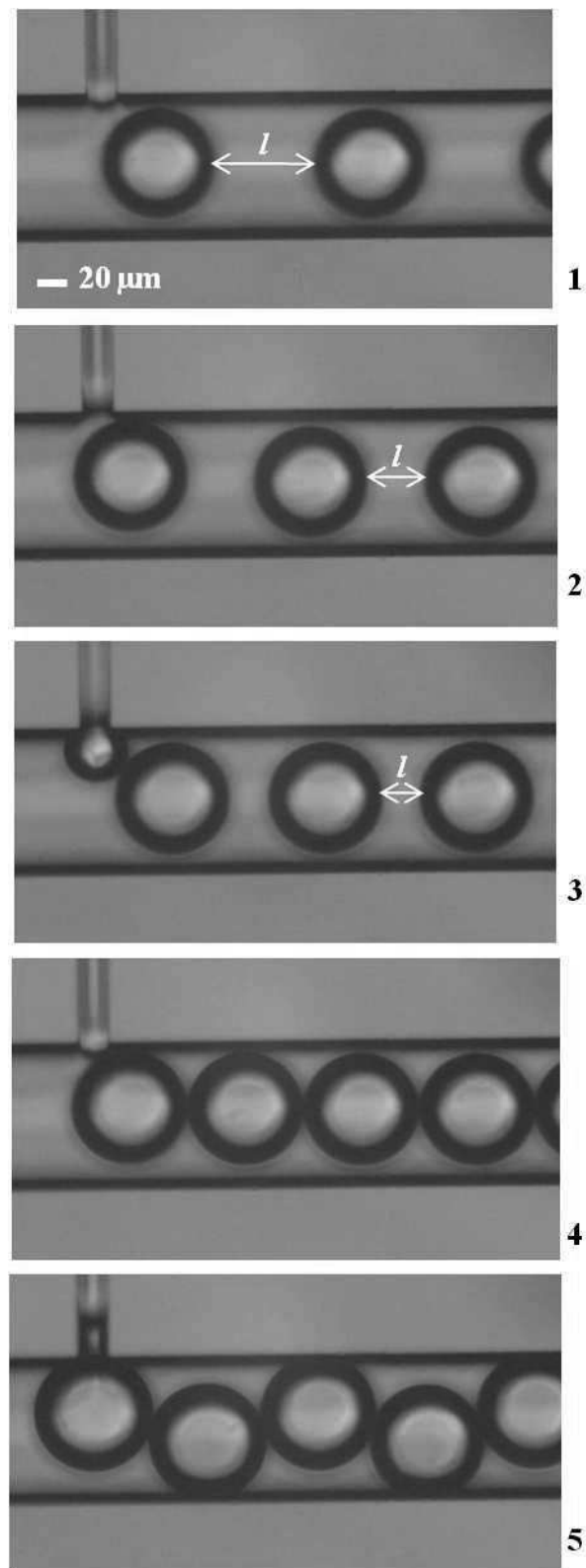


FIGURE 4.7 – Distance  $l$  entre deux gouttelettes consécutives avec  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 0,21 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_c = 0,12 \text{ cm/s}$  (1),  $\bar{v}_c = 0,1 \text{ cm/s}$  (2),  $\bar{v}_c = 0,085 \text{ cm/s}$  (3),  $\bar{v}_c = 0,065 \text{ cm/s}$  (4) et  $\bar{v}_c = 0,062 \text{ cm/s}$  (5).

particulièrement par la valeur de la tension interfaciale. Même en passant d'une tension interfaciale  $\sigma$  (huile de silicone - eau) = 100 mN/m à une tension interfaciale beaucoup plus petite  $\sigma$  (huile de tournesol - eau) = 37 mN/m, le régime balloon apparait toujours. Donc la présence de ce nouveau régime de génération de gouttelettes n'est pas forcément liée à la présence d'une large tension interfaciale comme nous avons pu l'imaginer.

#### 4.5.4/ VISCOSITÉ

Dans le but de mieux comprendre les causes à l'origine du régime balloon, nous avons réalisé les mêmes expériences avec les mêmes dimensions des microcanaux tout en changeant la nature du matériau utilisé (le PDMS au lieu du silicium). Ce changement nous permet de générer des gouttelettes d'eau dans l'huile au lieu des gouttelettes d'huile dans l'eau. Cela nous permet d'étudier l'influence du rapport de la viscosité sur la présence du régime balloon.

Les expériences montrent qu'en utilisant le PDMS, le stade I correspondant à la formation d'une gouttelette parfaitement circulaire, observé dans le régime dripping lors de la génération de gouttelettes dans les dispositifs intégrés sur silicium, n'apparait plus. De même le régime balloon n'est pas observé dans les dispositifs intégrés sur PDMS malgré l'utilisation des mêmes conditions expérimentales au niveau de la géométrie et des vitesses des phases continue et dispersée.

En effet dans les dispositifs intégrés sur PDMS et comme nous avons mentionné avant, en raison de l'hydrophobicité des microcanaux, la phase continue est l'huile. Cette phase huileuse est beaucoup plus visqueuse que la phase aqueuse utilisée comme phase continue dans les dispositifs intégrés sur silicium. Cela nous permet de comprendre l'absence du stade I lors de la génération de gouttelettes dans les dispositifs en PDMS et qui est essentiellement liée à la force de drag beaucoup plus importante dans le cas de la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile que dans le cas de la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau. Ainsi cette force commence à cisailer la gouttelette d'eau dans l'huile avant même que cette dernière ne puisse prendre sa forme circulaire. La formation de la gouttelette passe donc par deux stades principaux : le gonflement et le détachement (figure 4.8).

- Stade I' ou stade de gonflement de la gouttelette : ce stade est équivalent au stade II lors de la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau dans les dispositifs en silicium. Il commence dès l'arrivée de l'eau à la jonction en T, puis cette phase aqueuse entre dans le microcanal de la phase continue et forme une gouttelette déformée sous l'influence de ce courant d'huile.

On définit la fin du stade I', et par analogie à la fin du stade II dans la génération de gouttelettes dans les dispositifs en silicium, quand la gouttelette formée est tangente à l'extrémité gauche du microcanal contenant la phase continue.

- Stade II' ou stade de détachement de la gouttelette : ce stade est équivalent au stade III lors de la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau dans les dispositifs en silicium. Durant ce stade, la gouttelette commence à se détacher en passant rapidement de l'extrémité gauche à l'extrémité droite du microcanal de la phase continue pour enfermer le flux d'eau dans la gouttelette.

Les résultats de la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile dans une jonction en T fabriquée en PDMS sont en accord parfait avec les résultats obtenus en régime dripping par plusieurs auteurs [57, 43], etc qui eux aussi ne trouvent pas de stade I où la gouttelette a une forme parfaitement circulaire à l'intersection des microcanaux (figure 4.9).

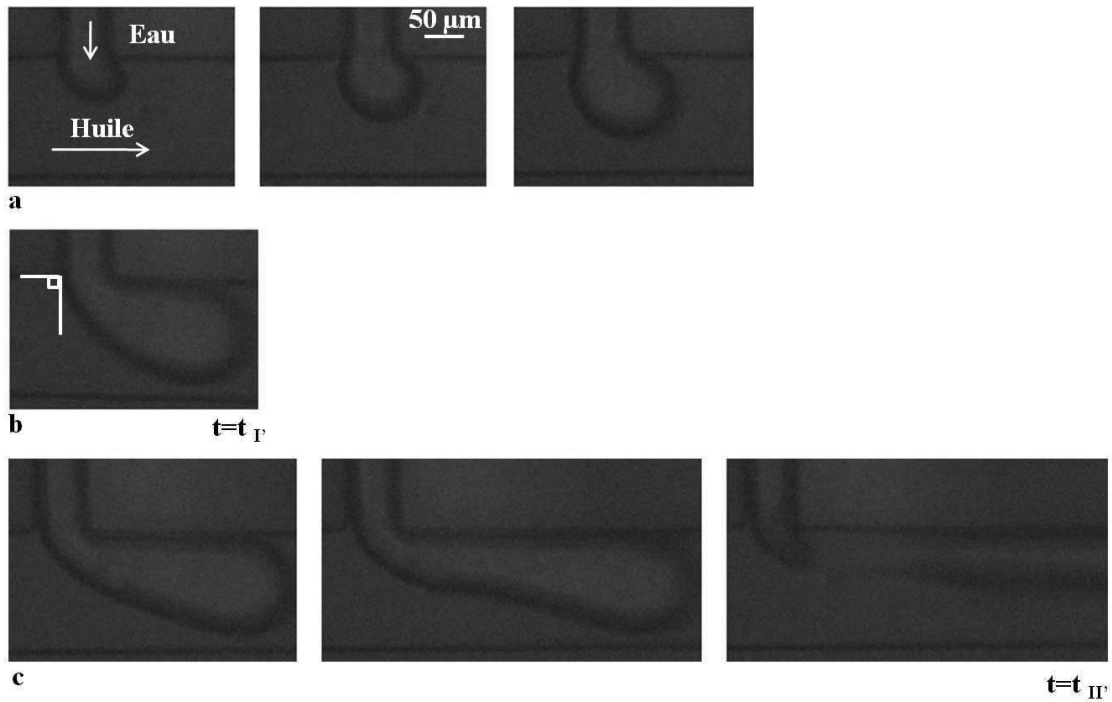


FIGURE 4.8 – Stades de formation des gouttelettes d’eau dans l’huile dans un dispositif en PDMS ( $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $h = 50 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_c = 3,5 \text{ cm/s}$ ), avec stade de gonflement (a), fin de stade de gonflement (b) et stade de détachement (c).

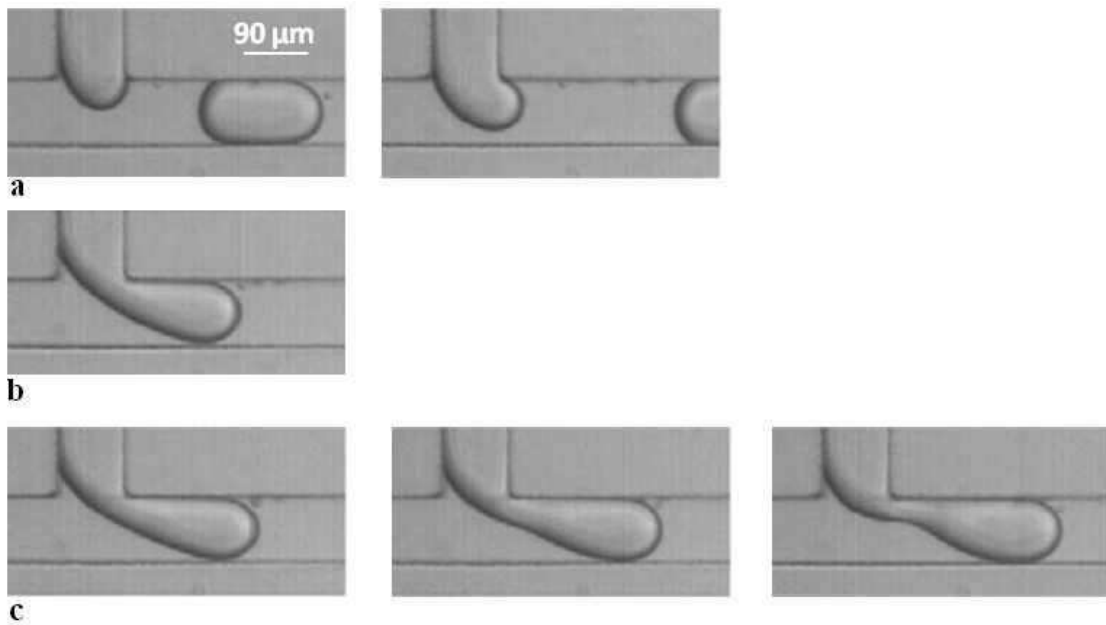


FIGURE 4.9 – Stades de formation des gouttelettes d’eau dans l’huile dans un dispositif en PDMS ( $w_c = 90 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 90 \mu\text{m}$  et  $h = 90 \mu\text{m}$ ) présentés par Yeom et al. [43], avec stade de gonflement (a), fin de gonflement (b) et stade de détachement (c).



En fait, la gouttelette est déformée dès sa formation à la jonction en T et ne prend sa forme finale qu'à une certaine distance dans le microcanal de la phase continue.

Il faut noter que Yeom et al. [43] ne définissent pas clairement le début et la fin de chaque stade (figure 4.9). Ils distinguent bien deux stades lors de la génération de gouttelettes d'eau dans l'huile mais sans préciser les critères qui conduisent à les différencier.

#### 4.6/ CONCLUSION

Dans cette partie, nous avons montré la présence d'un quatrième régime de génération de gouttelettes que nous avons appelé régime balloon inspiré par la géométrie de la gouttelette lors de sa formation. Dans ce régime particulier de génération (obtenue pour des valeurs de la vitesse de la phase dispersée  $\bar{v}_d$  inférieures à certaines valeurs critiques de la vitesse de cette phase), la gouttelette conserve sa forme circulaire tout le long de sa formation et ne subit aucune déformation liée à la présence de la force de drag, de plus elle a un diamètre constant quelles que soient les vitesses des phases continue et dispersée ( $\bar{v}_d < \bar{v}_d(\text{critique})$ ). En fait, la taille des gouttelettes générées ne dépend que de la géométrie des microcanaux de la jonction en T.

L'avantage de ce régime de génération réside dans deux points principaux :

- La possibilité d'obtenir des très basses fréquences de génération de gouttelettes (< 1 gouttelette/seconde). Cela est obtenu en utilisant des vitesses faibles de la phase dispersée.
- Un contrôle simple de l'espacement entre les gouttelettes consécutives (en contrôlant la vitesse de la phase continue).

L'influence de la géométrie des canaux et des vitesses des liquides sur la taille de gouttelettes générées en régime dripping et en régime balloon est résumée dans la table 4.6.

| Paramètres  | Régime dripping   | Régime balloon    |
|---|-------------------|-------------------|
| Vitesse de la phase continue $\bar{v}_c$          | oui               | non               |
| Vitesse de la phase dispersée $\bar{v}_d$         | oui               | non               |
| Largeur du microcanal de la phase continue $w_c$  | oui               | non               |
| Largeur du microcanal de la phase dispersée $w_d$ | oui               | oui               |
| Profondeur des microcanaux $h$                    | Faible dépendance | Faible dépendance |

TABLE 4.6 – Effet de certains paramètres sur la taille de la gouttelette formée en régime dripping et en régime balloon.



# DISPOSITIFS MICROFLUIDIQUES ACCORDABLES

## 5.1/ INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous allons aborder l'accordabilité de nos systèmes microfluidiques. Les réponses acoustiques et optiques de systèmes microfluidiques composés de bulles d'air dans l'eau ont été étudiées en fonction de la taille des bulles.

Les dispositifs microfluidiques sont les mêmes que ceux utilisés dans les chapitres précédents pour la génération de gouttelettes d'huile dans l'eau mais à la différence qu'ils sont adaptés aux applications acoustiques et photoniques.

Le choix des bulles et l'utilisation de tensioactif pour les stabiliser sont aussi discutés.

## 5.2/ MICROBULLES POUR LA PHOTONIQUE

L'intérêt de la microfluidique dans le domaine de la photonique réside dans la possibilité de produire des dispositifs opto-fluidiques accordables dans une large gamme, ce qui est difficilement réalisable avec les techniques classiques de microfabrication.

Par changement de la géométrie, Park et Lee [109] en 2004, ont montré la possibilité d'augmenter l'accordabilité relative de la fréquence de résonance d'un cristal photonique à plus de 30 % en utilisant une matrice polymère souple. Mais la distorsion de la géométrie rend cette stratégie difficile à utiliser dans la pratique, et la microfluidique reste la meilleure solution permettant d'améliorer la gamme de variation de la fréquence de résonance (> 100 %) en changeant la taille des gouttelettes ou des bulles.

D'autre part, pour changer l'indice de réfraction, plusieurs méthodes ont été utilisées depuis ces dernières années comme par exemple l'infiltration de liquide [110] ou l'utilisation de céramique ferro-électrique [111]. Mais ces méthodes restent relativement complexes, et les systèmes microfluidiques peuvent constituer une solution plus pratique. En effet, la vaste gamme de fluides disponibles (de l'air à des huiles spéciales) laisse un large choix pour le contraste de l'indice de réfraction, ce qui permet une optimisation facile de l'aspect photonique.

Dans cette partie, nous allons montrer la possibilité d'avoir un réseau de diffraction optique accordable tout en utilisant le même dispositif microfluidique et en changeant uniquement la taille des bulles générées. En effet, la période du réseau, considérée comme étant le

diamètre de la bulle générée, change facilement en variant la pression de l'air et le débit de l'eau [7].

### 5.2.1/ CHOIX DES BULLES

L'indice de réfraction  $n$  est une grandeur sans dimension caractéristique de chaque milieu et qui décrit le comportement de la lumière dans ce milieu. L'indice de réfraction est donné par :

$$n = \frac{c}{v} \quad (5.1)$$

avec  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide et  $v$  sa vitesse dans le milieu concerné.

L'indice de réfraction des fluides utilisés est donné dans la table 5.1.

| Fluide            | Indice de réfraction  |
|-------------------|-----------------------|
| Eau               | 1,332                 |
| Huile de silicone | $\approx 1,480-1,495$ |
| Air               | 1,00027               |

TABLE 5.1 – Indice de réfraction des fluides.

L'eau et les huiles de silicones ont des indices de réfraction très proches, ce qui se traduit par un faible contraste d'indice conduisant à une faible efficacité de diffraction.

Donc et dans le but d'améliorer ce contraste nous cherchons à générer des bulles d'air dans l'eau plutôt que des gouttelettes d'huile dans l'eau.

### 5.2.2/ DISPOSITIF MICROFLUIDIQUE

Les dimensions des dispositifs microfluidiques (20 mm × 20 mm) réalisés pour la génération des gouttelettes (chapitres 2, 3 et 4) ne sont pas adaptées aux applications photoniques ni acoustiques.

En effet, le réservoir de ces dispositifs a une largeur de 2 mm inférieure au diamètre du faisceau laser utilisé qui est de l'ordre de 2,3 mm. De même pour les applications acoustiques, les transducteurs utilisés ont un diamètre de 15 mm largement supérieure à la largeur de ce réservoir.

Afin de réaliser ces applications, des nouveaux dispositifs ont été fabriqués (figure 5.1). Dans ce cas, le réservoir dédié au stockage des bulles a une dimension centimétrique (longueur × largeur = 18 mm × 18 mm).

La largeur du microcanal de la phase dispersée  $w_d$  est de 20  $\mu\text{m}$ , celle de la phase continue  $w_c$  est de 100  $\mu\text{m}$ , et la profondeur  $h$  des microcanaux est de 50  $\mu\text{m}$ .

La distance entre l'entrée de l'eau et celle du gaz est de 13 mm, distance indispensable pour avoir une manipulation aisée au niveau des connecteurs. Les emplacements de ces deux entrées se traduisent donc par des longueurs des microcanaux de la phase continue et dispersée qui sont égales à 9 mm. Pour diminuer les pertes de charge dans ces microcanaux et comme nous avons expliqué dans les chapitres 1 et 2 (paragraphes 1.2.3 et 2.5.9), une diminution progressive des largeurs des microcanaux est réalisée comme le montre la figure 5.2.

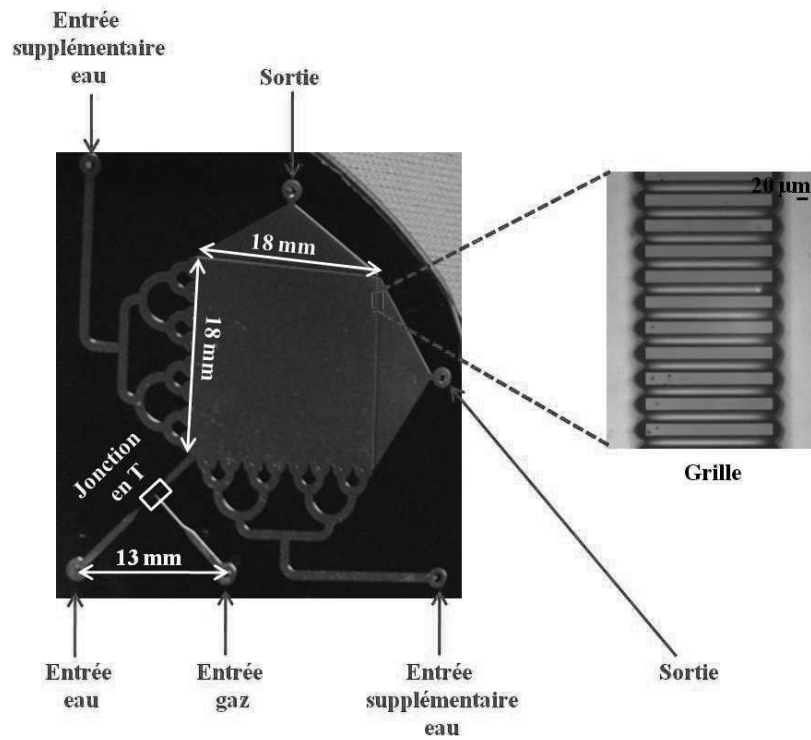


FIGURE 5.1 – Dispositif microfluidique pour des applications optiques ou acoustiques.

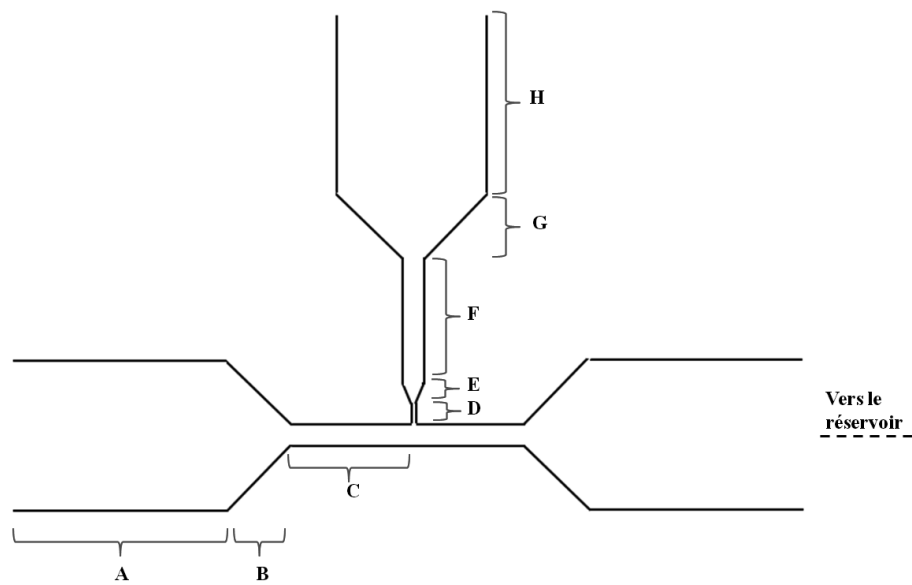


FIGURE 5.2 – Schéma de la jonction en T dans les dispositifs microfluidiques à applications optiques ou acoustiques.

| Canal | Longueur ( $\mu\text{m}$ ) | Largeur ( $\mu\text{m}$ ) |
|-------|----------------------------|---------------------------|
| A     | 50000                      | 700                       |
| B     | 1100                       | –                         |
| C     | 2900                       | 100                       |
| D     | 500                        | 20                        |
| E     | 300                        | –                         |
| F     | 2900                       | 100                       |
| G     | 1100                       | –                         |
| H     | 4200                       | 700                       |

TABLE 5.2 – Dimensions des canaux constituant la jonction en T dans les dispositifs microfluidiques à applications optiques ou acoustiques.

Les dimensions des canaux constituant la jonction en T sont données dans la table 5.2.

Des grilles ont été ajoutées aux deux sorties (figure 5.1) et qui vont jouer le rôle des barrières ralentissant ainsi la sortie des bulles du réservoir, afin d’avoir un temps suffisant pour réaliser les expériences et étudier l’interaction entre les bulles et les ondes optiques ou acoustiques. Les microcanaux constituant les grilles ont une largeur de  $20\ \mu\text{m}$ , une largeur inférieure au plus petit diamètre des bulles que nous cherchons à générer.

Deux entrées supplémentaires pour la phase continue ont été aussi faites comme le montre la figure 5.1. Elles seront utilisées pour évacuer les bulles de réservoir d’une part et empêcher les problèmes de blocage de certaines bulles à l’entrée de réservoir comme nous avons vu dans le cas de la génération de gouttelettes d’huile dans l’eau d’autre part (voir paragraphe 3.9.3 du chapitre 3). Pour ces entrées, la division progressive des canaux assure une distribution uniforme de l’écoulement d’eau sur toute la surface de réservoir.

Il faut noter que les étapes de fabrication de ces dispositifs sont les mêmes que celles décrites dans les paragraphes 2.5.1, 2.5.2, 2.5.3, 2.5.4 et 2.5.5 du chapitre 2 (photolithographie et gravure des microcanaux, photolithographie et gravure des trous pour avoir accès au réservoir et collage anodique avec un wafer de verre).

Étant composé de 4 dispositifs (figure 5.3), le wafer est ensuite découpé à la scie pour séparer chacune de ses unités (paragraphe 2.5.6 du chapitre 2).

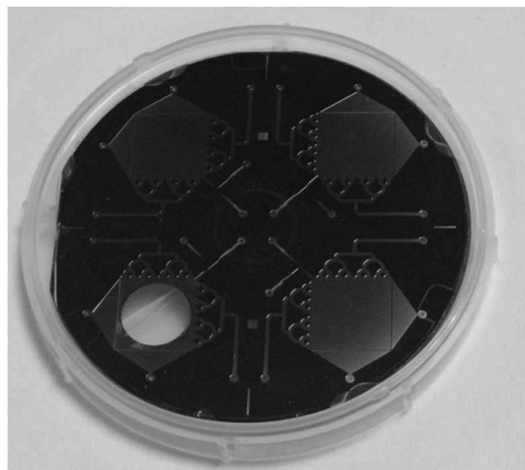


FIGURE 5.3 – Wafer entier avec les 4 dispositifs microfluidiques.

De même, la connectique est la même que celle décrite dans le paragraphe 2.5.7 du chapitre 2.

### 5.2.3/ GÉNÉRATION DE BULLES

Afin de générer des bulles d'air dans l'eau, l'air jouant le rôle de la phase dispersée est introduit dans le microcanal secondaire alors que la phase continue aqueuse est introduite dans le microcanal principal.

Un pousse-seringue est utilisé pour injecter et contrôler le débit de la phase aqueuse incompressible, alors qu'un régulateur de la pression de gaz est utilisé pour contrôler la pression de l'air. Ce régulateur de marque Dolomite permet de contrôler des pressions de l'air entre 17 mbar et 3288 mbar.

Un microscope a été utilisé pour visualiser et mesurer le diamètre des bulles générées.

La table 5.3 présente des exemples des valeurs du diamètre des bulles obtenu en fonction de la pression de l'air  $P$  et du débit de l'eau  $Q_c$ .

| $P$ (mbar) | $Q_c$ ( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) | $d$ ( $\mu\text{m}$ ) |
|------------|------------------------------------|-----------------------|
| 250        | 45                                 | 140                   |
| 250        | 95                                 | 90                    |
| 300        | 200                                | 70                    |
| 300        | 300                                | 52                    |

TABLE 5.3 – Diamètre des bulles générées dans les dispositifs microfluidiques en fonction de la pression de l'air et le débit de l'eau.

Des dizaines de valeurs pour le diamètre des bulles sont prises et le diamètre effectif est considéré comme étant le diamètre moyen (voir paragraphe 3.5 du chapitre 3). Le taux de polydispersité de diamètres des bulles est de l'ordre de quelques %.

### 5.2.4/ STABILISATION DE BULLES

Les bulles générées dans les systèmes microfluidiques sont généralement instables et coalescent rapidement après leur formation. Pour éviter cette coalescence et stabiliser les bulles, un tensioactif est ajouté à la phase continue. La stabilisation de bulles par les tensioactifs est de courte durée (de l'ordre de 5 minutes), mais elle est suffisante pour pouvoir observer les interactions entre les bulles et les ondes optiques après avoir déconnecté les pompes externes.

Étant donné que, dans notre cas, la phase continue est une phase aqueuse, le tensioactif utilisé doit présenter un HLB (hydrophile-lipophile-balance) élevé (paragraphe 1.4.4.2 du chapitre 1). C'est le cas de polyoxyéthylène sorbitan monolaurate commercialisé sous le nom de tween 20 (HLB = 16,7).

Ce tensioactif se met à l'interface entre l'air et eau, et va ainsi diminuer la tension de surface de 72 mN/m ( $\sigma$  eau/air) à 37 mN/m ( $\sigma$  eau+tween 20/air). Cette valeur mesurée (par le tensiomètre KRUSS) de la tension de surface ( $\sigma$  eau+tween 20/air) est compatible avec les valeurs trouvées dans la littérature [45, 64, 112].

La concentration  $C$  de tensioactif ajoutée doit être supérieure à sa concentration micellaire critique CMC. Lorsque  $C < \text{CMC}$ , le tensioactif forme un film à la surface du liquide et le

reste est dispersé dans la solution, alors que si  $C > \text{CMC}$ , le tensioactif s'auto-organise et forme des micelles stables à l'interface.

Dans notre cas, nous avons préparé une solution de tween 20 ayant une concentration de  $18 \text{ mol/m}^3$  largement supérieure à sa concentration micellaire critique ( $\text{CMC} = 0,059 \text{ mol/m}^3$  [45, 112]). Cette concentration correspond à un volume de 2 mL (dosé par une micro-pipette) de tween 20 dans 100 mL d'eau.

Afin de vérifier si la concentration de tween 20 préparée est suffisante pour stabiliser les surfaces de bulles de rayon  $r$ , nous allons comparer le nombre de molécules nécessaires de ce tensioactif ( $N_r$ ) au nombre de molécules ( $N$ ) réellement présentes dans le réservoir.

Dans tout ce qui se suit, nous considérons que les bulles générées ont une forme cylindrique (voir paragraphe 3.3). Cette forme est illustrée dans la figure 5.4.

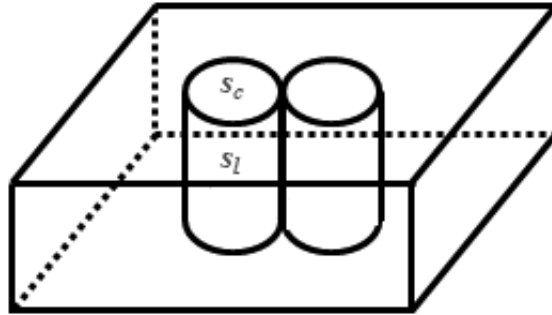


FIGURE 5.4 – Schéma représentant la forme de la bulle considérée comme étant cylindrique.

Le nombre de molécule  $N_r$  est donné par l'équation :  $N_r = 2 \frac{S_l}{s}$ , avec  $S_l$  la surface latérale de la totalité de bulles et  $s$  la surface d'une molécule de tensioactif. Il faut noter que la surface de bulles doit être multipliée par 2, puisque le tensioactif va agir de part et d'autre de l'interface entre l'eau et l'air.

La surface latérale de la totalité de bulles est donnée par :  $S_l = n_b s_l$ , avec  $n_b$  le nombre de bulles présentes dans le réservoir et  $s_l$  la surface latérale d'une seule bulle exprimée par :  $s_l = 2\pi r h$  ( $h$  la hauteur de la bulle estimée égale à la profondeur du microcanal).

En considérant que les bulles sont organisées dans une structure 2D compacte (chaque bulle est entourée de 6 autres bulles (figure 5.5)), la densité surfacique de cet arrangement est :  $d = \frac{\frac{3\pi r^2}{6}}{\sqrt{3}r^2} = \frac{\pi}{2\sqrt{3}} = 0,9069$ .

Donc le nombre de bulles présentes dans le réservoir est calculé comme suit :  $n_b = 0,9069 \frac{S}{s_c}$ , avec  $S$  la surface du réservoir et  $s_c$  la surface supérieure de la bulle exprimée par :  $s_c = \pi r^2$ .

La surface latérale est donc exprimée par :  $S_l = n_b s_l = 0,9069 \frac{S}{s_c} s_l = 0,9069 \frac{S}{\pi r^2} 2\pi r h = 1,8 \frac{S h}{r}$ .

Étant donné que nous ne connaissons pas la valeur exacte de la surface  $s$  d'une molécule de tween 20, nous l'avons estimé à  $1 \text{ nm}^2$ . Cette valeur est une valeur moyenne pour un tensioactif non ionique groupe auquel appartient le tween 20. En effet, les valeurs de surface d'une molécule de tensioactif non ionique varient entre  $0,3$  et  $1,3 \text{ nm}^2$  [113].

Donc le nombre de molécules nécessaires de tween 20 est donné par :  $N_r = 2 \frac{S_l}{s} = 3,6 \frac{S h}{r s}$ .

Pour un diamètre de bulles entre  $140 \text{ }\mu\text{m}$  et  $40 \text{ }\mu\text{m}$ , le nombre  $N_r$  de molécules de tween 20 varie entre  $8 \cdot 10^{14}$  molécules et  $3 \cdot 10^{15}$  molécules.



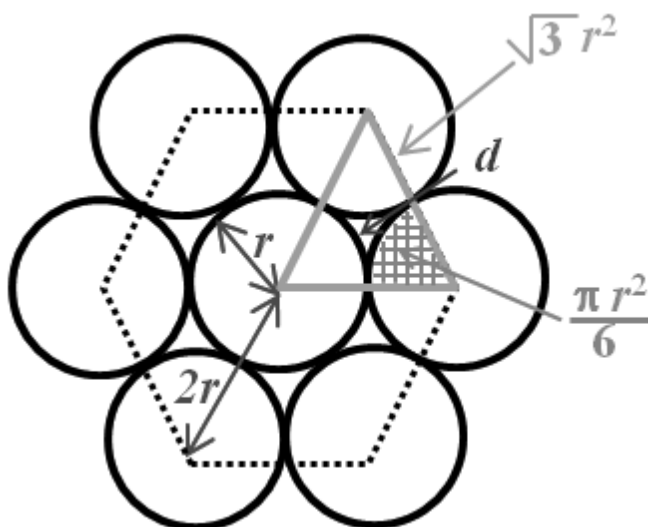


FIGURE 5.5 – Arrangement compact de cercles dans un plan.

D'autre part, le nombre  $N$  de molécules de tween 20 introduites est donné par :  $N = n NA$ , avec  $n$  le nombre de mol et  $NA$  le nombre d'Avogadro ( $NA = 6,02 \cdot 10^{23}$ ).

Le nombre de mol  $n$  est exprimé par l'équation :  $n = CV$ , avec  $V$  le volume de la solution introduite. Ce volume n'est autre que le volume de réservoir ( $V$  (réservoir) =  $Sh = 16,2 \mu\text{L}$ ) multiplié par 0,0931. En effet, et comme décrit précédemment les bulles d'air occupent 90,69 % du volume total du réservoir et l'eau n'occupe que 9,31 %, donc le volume de l'eau est :  $V = 0,0931Sh$ .

Donc cela nous donne  $N = 0,0931CS hNA = 2 \cdot 10^{16}$  molécules, largement supérieure à  $N_r$ , donc la concentration initiale préparée de tween 20 ( $C = 18 \text{ mol/m}^3$ ) est suffisante pour stabiliser les surfaces de bulles.

D'une façon générale, la concentration de tween 20 nécessaire pour stabiliser les surfaces des bulles dépend du rayon de ces bulles. Plus le rayon est petit, plus la concentration nécessaire est élevée.

En effet, pour stabiliser les surfaces des bulles, il faut que :  $\frac{N}{N_r} \geq 1$ . Mais étant donné que la valeur exacte de la surface d'une molécule de tensioactif n'est pas connue et pour avoir un facteur de sécurité, nous considérons que :  $\frac{N}{N_r} > 5$ . Dans ce cas, nous avons :  $\frac{0,0931CS hNA}{3,6 \frac{Sh}{rs}} \approx \frac{1}{40} sNACr$ , donnant ainsi :

$$C > 3 \cdot 10^4 \left( \frac{1}{r} \right) \quad (5.2)$$

### 5.2.5/ ARRANGEMENT DE BULLES

Les bulles s'auto-organisent et forment des réseaux périodiques contrairement aux cas de gouttelettes générées précédemment dans les chapitres 3 et 4. Cela est dû principalement à la différence des fréquences de génération entre les bulles et les gouttelettes. En effet les bulles se génèrent à des vitesses très élevées par comparaison avec les gouttelettes de même taille, ce qui facilite le remplissage de la totalité du réservoir (figure 5.6) et ainsi l'auto-organisation des bulles.

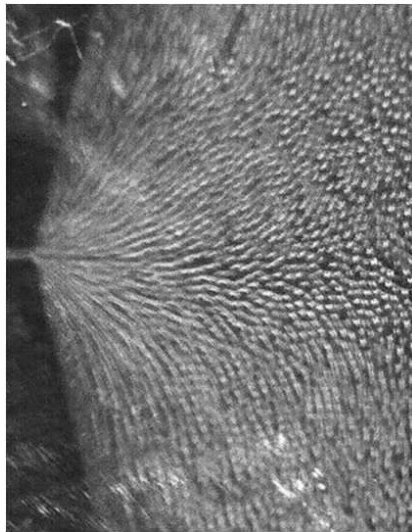


FIGURE 5.6 – Génération de bulles à des grandes vitesses conduisant au remplissage de la totalité du réservoir.

Le réseau de bulles formé a une symétrie hexagonale comme le montre la figure 5.7.

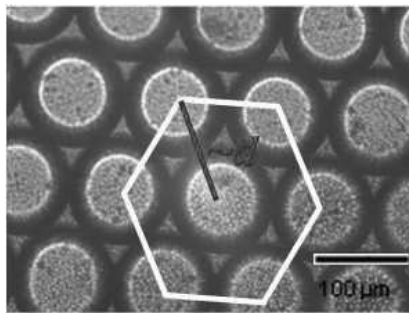


FIGURE 5.7 – Arrangement hexagonal de bulles.

#### 5.2.6/ INTERACTION BULLES/ONDE OPTIQUE

L'arrangement régulier des bulles rend possible l'obtention de réseau de diffraction optique.

Le faisceau lumineux incident (une source laser ayant une longueur d'onde  $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ ) est dirigé perpendiculairement vers le dispositif microfluidique (réseau de bulles) comme le montre la figure 5.8.

Le résultat de l'interaction entre la lumière et ce réseau de bulles est observé sur un écran de visualisation. Cet écran est parallèle au plan du réseau et est placé à une grande distance ( $D = 2,70 \text{ m}$ ). La figure de diffraction présente les ordres +1 et -1 selon les trois directions principales du réseau de bulles. Cela conduit à l'obtention d'une figure de forme hexagonale (figure 5.9) présentant la même symétrie que celle du réseau de bulles.

La relation entre la distance  $l$  de deux maxima d'intensité et le diamètre  $d$  des bulles générées (considéré comme étant la période du réseau) est obtenue à partir de l'équation de Bragg :

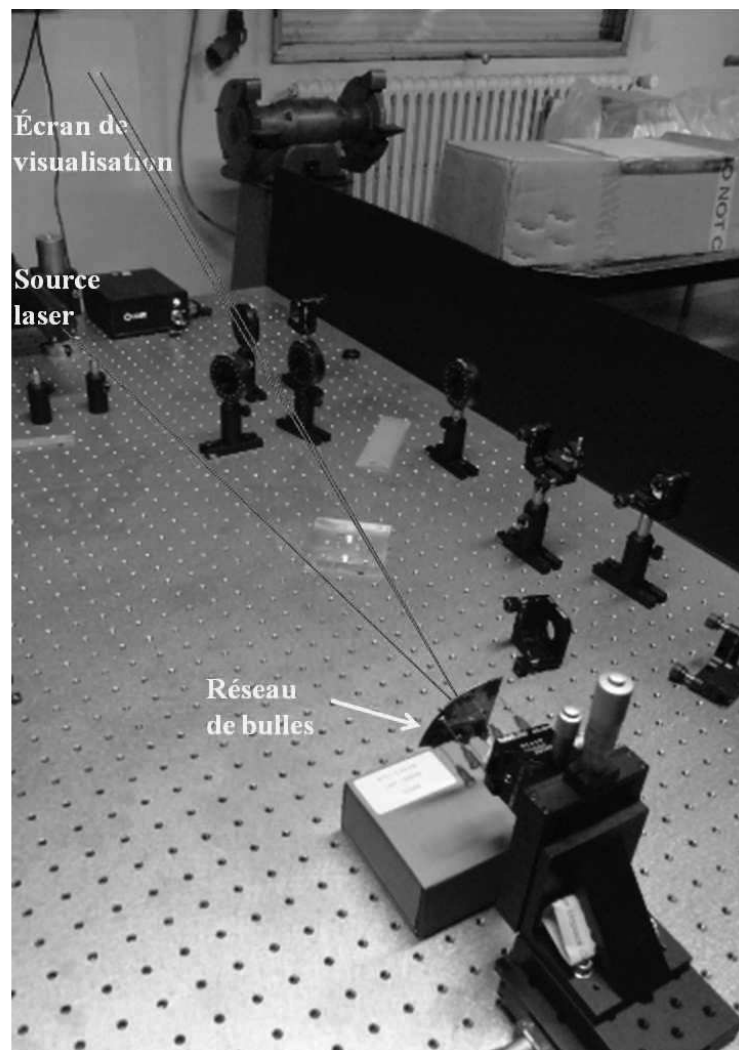


FIGURE 5.8 – Montage expérimental utilisé pour étudier l'interaction bulles/onde optique.

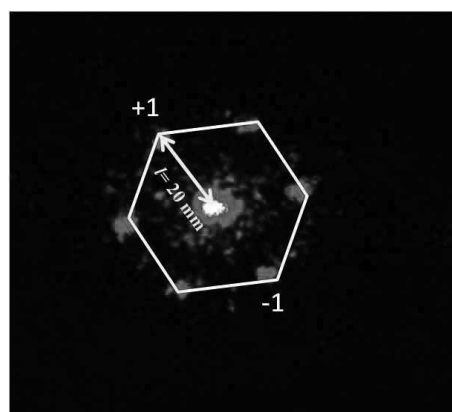


FIGURE 5.9 – Figure de diffraction résultante de l'interaction entre le réseau de bulles et la source laser, avec  $d = 77 \mu\text{m}$  et  $l = 20 \text{ mm}$ .

$$\sin\theta_d - \sin\theta_i = n\frac{\lambda}{d} \quad (5.3)$$

avec  $n$  l'ordre de diffraction.

Il faut noter que la figure de diffraction en réflexion ne fait apparaître qu'un seul ordre (+1/-1), car l'épaisseur du réseau (considérée comme étant la profondeur du microcanal  $h = 50 \mu\text{m}$ ) est grande par rapport à la longueur d'onde. On se trouve donc avec un réseau épais en régime de Bragg ( $n = 1$ ) [114].

Étant donné que les angles des faisceaux incident ( $\theta_i$ ) et diffracté ( $\theta_d$ ) sont faibles, on a  $\sin\theta \approx \theta$ . Cela nous permet d'écrire :

$$l = (\theta_d - \theta_i)D = \frac{\lambda D}{d} \quad (5.4)$$

Cette équation est une équation linéaire de type  $y = ax$  avec  $y = l$ ,  $x = \frac{1}{d}$  et  $a = \lambda D$  la pente de la droite. Cette pente est déterminée expérimentalement en traçant  $l$  en fonction de  $\frac{1}{d}$  (figure 5.10).

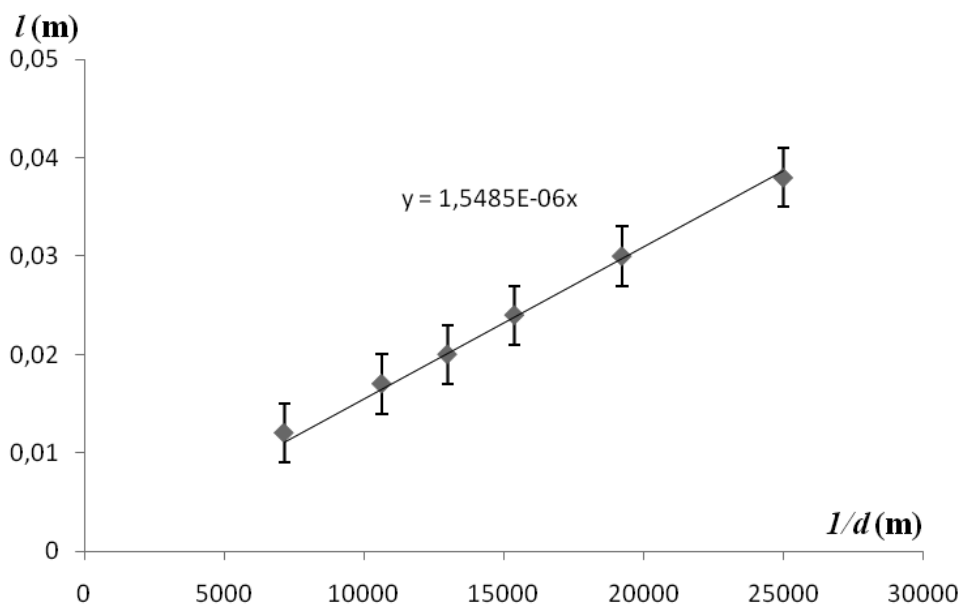


FIGURE 5.10 – Variation de la distance entre deux maxima d'intensité en fonction du diamètre de bulles.

Les valeurs expérimentale et théorique de la pente sont respectivement :  $a_e = 1,5485 \cdot 10^{-6} \text{m}^2$  et  $a_t = 1,7086 \cdot 10^{-6} \text{m}^2$ .

L'écart entre ces valeurs est donné par :  $\frac{|a_e - a_t|}{a_t} \times 100 = 9,3 \%$ . Cet écart est faible, ce qui confirme que le diamètre de bulles n'est autre que la période du réseau.

Pour conclure, nous pouvons dire que la période de réseau de diffraction considérée comme étant le diamètre des bulles générées est facilement modifiable en contrôlant les paramètres de génération comme la géométrie, la pression de l'air ou le débit de l'eau. Cette accordabilité peut être utilisée dans le domaine de la spectroscopie pour l'analyse des compositions chimiques par exemple...

### 5.3/ MICROBULLES POUR L'ACOUSTIQUE

Depuis des années, l'interaction entre les bulles et les ondes acoustiques fait l'objet de plusieurs études. En 1906, Bjerknæs [11] a étudié le comportement des bulles excitées à leur fréquence de résonance. En 1932, Lamb [115] a introduit l'étude des ondes acoustiques de surface des bulles. Actuellement, les scientifiques cherchent à étudier l'interaction des bulles encapsulées avec les ondes acoustiques. Par exemple dans le domaine de la médecine, les microbulles dont le diamètre varie entre 1 et 10  $\mu\text{m}$  sont utilisées comme des agents de contraste ultrasonore pour la destruction de thrombus et des tumeurs [15, 36, 96]...

Dans le cadre de cette thèse, nous étudions l'interaction d'une bulle individuelle avec l'onde acoustique en utilisant des transducteurs à 1 MHz.

#### 5.3.1/ CHOIX DES BULLES

La résistance d'un milieu au passage des ondes acoustiques est caractérisée par l'impédance acoustique. Chaque milieu a une impédance caractéristique  $Z$  qui est donnée (dans le cas d'un espace illimité) par l'équation :

$$Z = \rho c \quad (5.5)$$

avec  $\rho$  la masse volumique et  $c$  la vitesse du son.

Lorsqu'une onde acoustique rencontre l'interface entre deux milieux, deux cas peuvent être observés :

- Si les deux milieux ont des impédances acoustiques différentes (donc des masses volumiques différentes), une partie de l'onde acoustique est réfléchiée sur l'interface et une autre partie est transmise dans le milieu.  
C'est le cas des bulles d'air dans l'eau. Ces deux fluides ont des masses volumiques différentes (table 5.4), ce qui présente un bon contraste permettant d'obtenir des réponses acoustiques différentes en fonction de la taille des bulles générées.
- Si les deux milieux ont des impédances acoustiques proches, toute l'onde acoustique est transmise dans le milieu qui est considéré comme un milieu homogène.  
C'est le cas des gouttelettes d'huile dans l'eau. Ces deux fluides ont des masses volumiques proches (table 5.4), donc en changeant la taille de ces gouttelettes, la réponse acoustique reste inchangée.

| Fluide                | Masse volumique ( $\text{Kg}/\text{m}^3$ ) |
|-----------------------|--|
| Eau                   | 1000                                       |
| Huile dow corning 704 | 1070                                       |
| Air                   | 1204                                       |

TABLE 5.4 – Masses volumiques des fluides.

Nous allons donc étudier l'interaction bulles/ondes acoustiques, plutôt que l'interaction gouttelettes/ondes acoustiques.

#### 5.3.2/ INTERACTION BULLES/ONDES ACOUSTIQUES

Afin d'étudier l'interaction entre les bulles et l'onde acoustique, le dispositif microfluidique a été placé entre deux transducteurs ultrasonores (un transducteur d'émission et un autre

de réception) fonctionnant dans une bande large autour de 1 MHz avec une longueur relative de 50 %, comme le montre la figure 5.11.

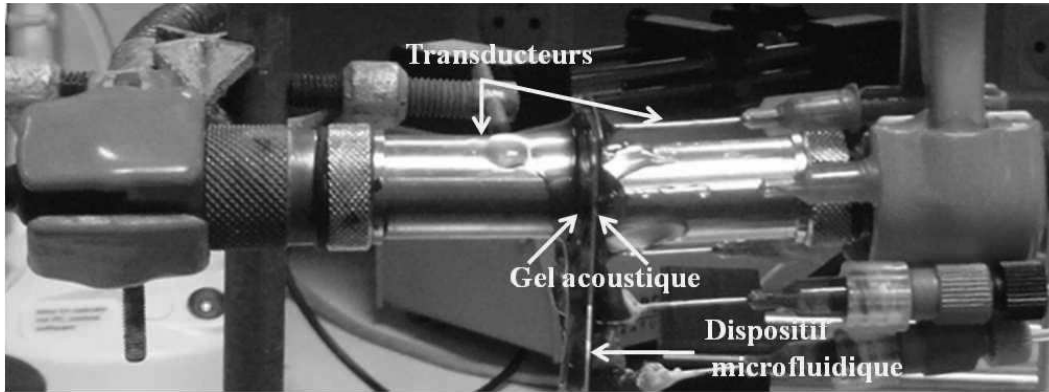


FIGURE 5.11 – Montage expérimental utilisé pour étudier l'interaction bulles/onde acoustique.

Un gel acoustique a été mis à chaque interface entre le transducteur et le dispositif microfluidique dans le but d'avoir un milieu adapté à la propagation des ultrasons.

Tout d'abord, nous avons testé le dispositif microfluidique totalement rempli d'eau. Le spectre acoustique obtenu est une courbe totalement lisse montrant que notre système transmet totalement les ondes acoustiques (figure 5.12).

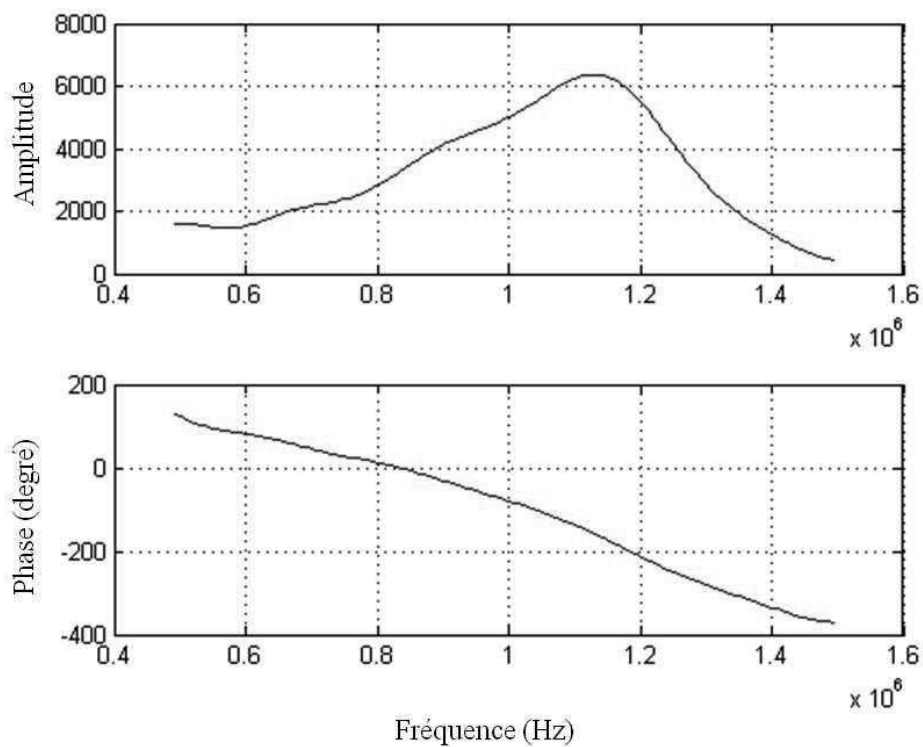


FIGURE 5.12 – Résultat de l'interaction entre le dispositif microfluidique rempli d'eau et l'onde acoustique.

Ensuite, nous avons testé le dispositif microfluidique rempli de bulles d'air dans l'eau de diamètre  $d = 100 \mu\text{m}$ . On remarque la présence de plusieurs zéro de transmission (figure 5.13), indiquant que l'onde ne traverse pas le film fluide, bien que la longueur d'onde ( $\lambda = 3 \text{ mm}$ ) de l'onde incidente soit très grande par rapport à l'épaisseur du film ( $h = 50 \mu\text{m}$ ).

Une interprétation possible du phénomène observé est que les bulles d'air dans l'eau ont stocké une partie de l'énergie sonore et ont ainsi changé la transmission acoustique du système. En d'autre terme, les modes propres des bulles ont été excités et ces derniers jouent le rôle des résonateurs qui stockent l'énergie acoustique.

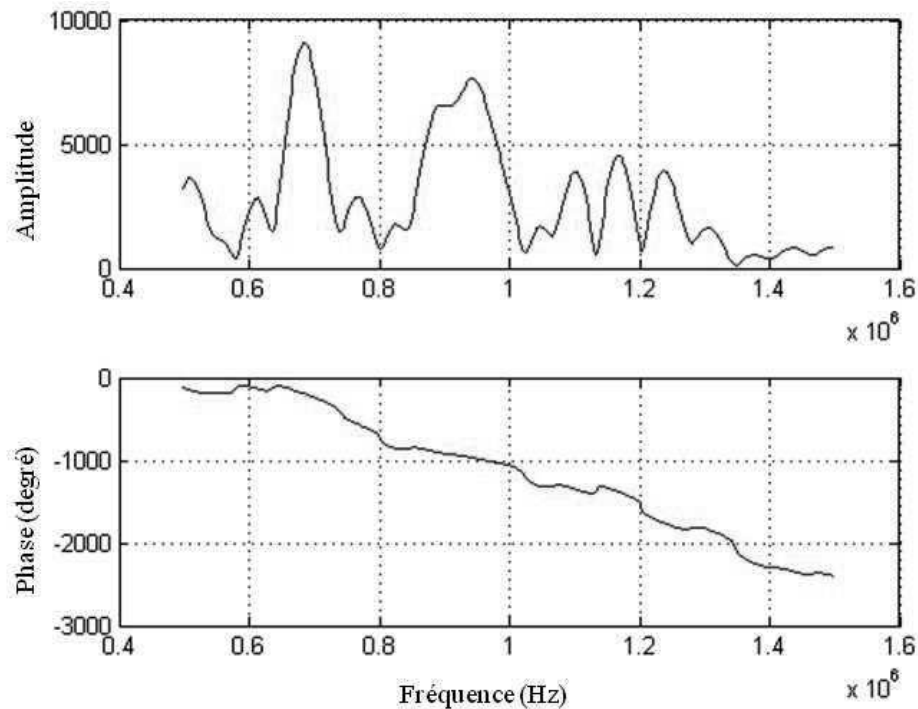


FIGURE 5.13 – Résultat de l'interaction entre les bulles et l'onde acoustique dans un dispositif microfluidique rempli des bulles d'air dans l'eau de diamètre  $d = 100 \mu\text{m}$ .

Le phénomène observé ne représente pas une résonance de Bragg qui est obtenue lors d'une interaction collective entre le réseau de bulles à travers le film liquide, et l'onde acoustique [116]. Autrement dit, ce phénomène (résonance de Bragg) est fondé sur les interférences constructives et destructives issues de la diffusion de l'onde acoustique rencontrant un obstacle (ici les bulles). Ce phénomène est lié à la période du résonateur donc au diamètre des bulles générées. Pour un diamètre  $d$  de bulles de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$ , cette résonance apparaîtrait à une fréquence de l'ordre de  $7,5 \text{ MHz}$  largement supérieure à  $1 \text{ MHz}$ . En effet, la fréquence  $f_b$  de résonance de Bragg est donnée par :  $2\pi f_b = c \frac{\pi}{d}$ , avec  $c$  la vitesse du son dans l'eau ( $c = 1500 \text{ m/s}$ ).

Le domaine de fréquence utilisé ( $0,6 \text{ MHz}$  à  $1,5 \text{ MHz}$ ) nous ne permet pas d'observer la résonance de premier ordre de type respiratoire ou ce qu'on appelle la résonance de Minnaert [117]. Cette dernière est observée, pour une bulle de  $100 \mu\text{m}$  de diamètre, à une fréquence de l'ordre de  $65 \text{ kHz}$ . En effet, la fréquence  $f_m$  de Minnaert est donnée par :  $f_m = \frac{1}{\pi d} \sqrt{\frac{3\gamma P_0}{\rho}}$ , soit en prenant  $\gamma = 1,4$ ,  $P_0 = 10^5 \text{ Pa}$  et  $\rho = 10^3 \text{ kg/m}^3$ ,  $f_m = \frac{6,52}{d}$  (Hz).

Les modifications de la transmittance acoustique semblent être liées à des résonances complexes du milieu liquide à bulles.

Nous supposons que le couplage entre les bulles est à la base du phénomène observé. Cela peut expliquer les zéros de transmission dans le spectre et qui sont obtenues dans le cas des anti-résonances. Ces dernières sont mises en évidence par la présence de sauts de phase de  $\pi$ .

Cependant, il reste la possibilité que le phénomène observé dans nos expériences ne soit pas lié à des résonances dans le milieu liquide à bulles mais plutôt à celles de la structure, et plus particulièrement aux membranes de silicium et de verre. Dans ce cas, les piliers liquides entre les bulles coupleraient sélectivement la vibration d'une membrane à l'autre.

Mais cette hypothèse semble peu probable en considérant l'absence de variation de transmittance sur la figure 5.13, où le couplage doit être encore plus fort.

La figure 5.14 illustre le spectre acoustique obtenu avec un système microfluidique rempli de bulles de diamètre  $d = 70 \mu\text{m}$ .

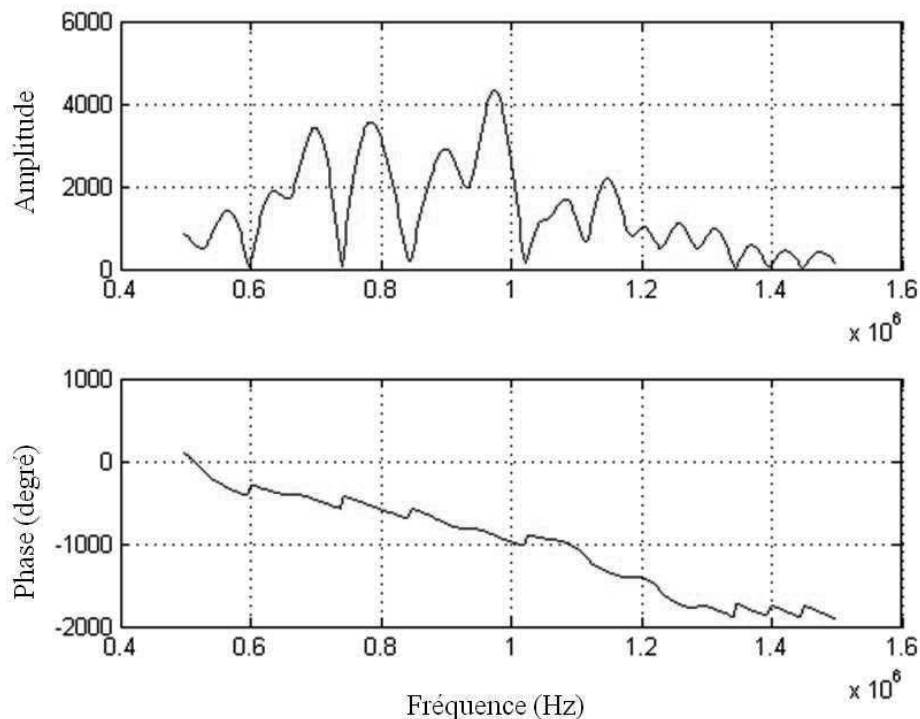


FIGURE 5.14 – Résultat de l'interaction entre les bulles et l'onde acoustique dans un dispositif microfluidique rempli des bulles d'air dans l'eau de diamètre  $d = 70 \mu\text{m}$ .

La comparaison entre les figures 5.13 et 5.14 montre que la réponse acoustique du système dépend du diamètre des bulles générées, mettant en évidence l'accordabilité du système micro-acousto-fluidique.

## 5.4/ CONCLUSION

Dans ce chapitre nous avons présenté quelques aspects applicatifs de la microfluidique diphasique basée sur la génération de bulles d'air dans l'eau en présence d'un tensioactif



le tween 20. L'ajout de ce dernier à la phase aqueuse conduit à la stabilisation de bulles pour une durée suffisante pour réaliser les applications souhaitées (optique et acoustique).

En terme d'application optique, nous avons montré que le réseau hexagonal des bulles générées dans le dispositif microfluidique constitue un réseau de diffraction optique dont la période n'est autre que le diamètre  $d$  de ces bulles. Ce dernier est facilement modifiable en contrôlant les paramètres de génération comme la géométrie, la pression de l'air ou le débit de l'eau. Cela a permis l'obtention des systèmes micro-opto-fluidique facilement accordables dans une large gamme ( $d$  a varié entre 40  $\mu\text{m}$  et 140  $\mu\text{m}$  donnant une variation de l'angle  $\theta$  entre  $0,91^\circ$  et  $0,26^\circ$ ).

En terme d'application acoustique, nous avons étudié la transmittance d'un système microfluidique rempli de bulles d'air dans l'eau. La réponse acoustique semble être liée à la résonance des bulles dans le milieu liquide. Cette réponse est une fonction du diamètre des bulles générées.



# CONCLUSION GÉNÉRALE

Le travail effectué dans le cadre de cette thèse a concerné la réalisation des dispositifs microfluidiques pour la génération de gouttelettes/bulles micrométriques monodispersées en vue d'applications dans les domaines de l'acoustique, de la photonique et de l'électronique.

Après une étude bibliographique sur les géométries de générateur donnant des gouttelettes monodispersées (jonction en T, flow-focusing, co-flowing...), nous avons choisi une géométrie simple, la jonction en T, en se basant sur le fait que l'évolution de la taille des gouttelettes/bulles dans cette configuration est directement liée à la géométrie (plus nous diminuons les dimensions des microcanaux de la jonction en T, plus nous pouvons diminuer la taille de la gouttelette générée).

De même, l'étude de différents matériaux utilisés dans la microfabrication, nous a permis de choisir la technologie silicium-verre afin de fabriquer nos propres dispositifs microfluidiques. Ce choix vient du fait que ces matériaux supportent la pression et rendent ainsi possible la génération de gouttelettes de petite taille. De plus l'usage des techniques de gravure profonde (DRIE) a permis l'obtention des canaux bien verticaux améliorant ainsi la formation des gouttelettes.

Nous avons su faire évoluer cette technologie pour résoudre différents problèmes empêchant d'atteindre les objectifs de diminution de la taille des gouttelettes.

Dans nos propres dispositifs microfluidiques, nous sommes arrivés à générer des gouttelettes dont le diamètre varie dans une large gamme allant de 200  $\mu\text{m}$  à 5  $\mu\text{m}$ . Ces gouttelettes sont monodispersées et présentent un taux de polydispersité qui ne dépasse pas en général les 2 %.

Concernant les régimes de génération de ces gouttelettes, notre choix s'est porté sur le régime dripping puisqu'il conduit à la génération de gouttelettes de petite taille (gouttelette dont le diamètre est inférieur à la largeur du microcanal de la phase continue). Ce choix est basé sur le fait que les deux autres régimes de génération connus (jetting et squeezing) ne sont pas adaptés à nos besoins. En effet, le régime jetting est un régime chaotique et dont les conditions d'obtention sont difficiles à maintenir alors que le régime squeezing est un régime dont lequel la taille de la gouttelette générée est supérieure à la largeur du microcanal de la phase continue.

Nous avons étudié le mécanisme de formation des gouttelettes dans le régime dripping et mis en évidence que dans le cas de gouttelettes d'huile dans l'eau, la formation de la gouttelette passe par trois stades principaux :

- Stade I : la gouttelette a une forme circulaire et sa taille est une fonction de la largeur du microcanal de la phase dispersée.
- Stade II : la gouttelette se gonfle et se déforme avant qu'elle se détache et sa forme est maintenue par un équilibre entre la force de drag et la force de tension.
- Stade III : la gouttelette se détache et un nouveau cycle commence.

En plus des trois régimes connus de génération de gouttelettes dans la jonction en T, nous avons mis au évidence un nouveau régime que nous avons appelé le régime balloon inspiré de la façon avec laquelle la gouttelette se forme à la jonction en T. Ce régime est observé à des vitesses relativement faibles de la phase dispersée. Dans ce cas, le stade I continue jusqu'au détachement de la gouttelette.

Dans ce régime particulier de génération, la gouttelette conserve sa forme circulaire tout le long de sa formation et ne subit aucune déformation liée à la présence de force de drag. En plus sa taille est constante et ne dépend que de la géométrie des microcanaux indépendamment des vitesses des phases continue et dispersée.

Afin de contrôler la taille de la gouttelette générée dans le régime dripping et ainsi avoir des systèmes microfluidiques accordables, nous avons étudié différents paramètres, plus particulièrement la géométrie des microcanaux (largeur et profondeur) et les vitesses de deux phases.

Au niveau de la géométrie, nous avons montré que le diamètre de la gouttelette diminue quand la largeur du microcanal de la phase continue et/ou de la phase dispersée diminue, alors qu'il présente une légère dépendance avec la profondeur des microcanaux. Au niveau des vitesses des phases, nous avons montré que le diamètre de la gouttelette diminue quand la vitesse de la phase continue augmente et quand la vitesse de la phase dispersée diminue mais jusqu'à une certaine valeur limite où la taille de la gouttelette reste constante quelles que soient les vitesses de deux phases. Dans ce cas, nous passons du régime dripping au régime balloon.

De la même manière et dans le but de mieux comprendre le nouveau régime balloon, nous avons étudié l'influence de la géométrie et des vitesses des deux phases sur la génération de gouttelettes. Nous avons trouvé que la taille de la gouttelette n'est qu'une fonction de la largeur du microcanal de la phase dispersée. Les vitesses de deux phases n'ont aucune influence sur la taille de la gouttelette générée. En effet la phase continue joue le rôle du transporteur de la gouttelette et sa vitesse affecte la densité de gouttelettes dans le microcanal de la phase continue (c'est-à-dire la distance entre deux gouttelettes consécutives), alors que la vitesse de la phase dispersée contrôle la fréquence de génération de gouttelettes (c'est-à-dire le nombre de gouttelette générée par unité de temps).

En terme d'applications, nous avons pu valider l'effet de l'accordabilité de nos systèmes microfluidiques. Plus précisément, nous avons étudié l'interaction entre les bulles et les ondes optiques et nous avons montré que la réponse optique change en fonction de la taille des bulles générées tout en travaillant avec le même système microfluidique, sans changement de la géométrie, ni des fluides utilisés. De même, nous avons étudié l'interaction entre les bulles et les ondes acoustiques et la réponse acoustique semble être liée à la résonance des bulles dans le milieu liquide. Cette réponse est aussi une fonction du diamètre des bulles générées.

# PERSPECTIVES

En perspectives, un certain nombre d'études seront envisagés pour la suite de cette thèse.

Au niveau des régimes de génération de gouttelettes, une étude plus avancée du régime balloon est nécessaire. Pour cela, il faut réaliser une série de dispositifs microfluidiques de géométrie différente afin d'étudier les conditions limites pour l'obtention de ce régime particulier. Parallèlement, une étude théorique complète est nécessaire pour établir un modèle analytique reliant la taille de la gouttelette formée à la géométrie du système.

Au niveau de la taille de bulles, il sera intéressant d'étudier la génération de bulles de taille comparable à l'échelle de la longueur d'onde et qui peuvent servir comme cristaux photoniques. Pour cela, la méthode la plus adaptée est l'utilisation d'un système à deux niveaux [47, 118, 119]. Dans cette configuration, la formation de bulles se fait à l'intersection entre les deux niveaux micrométrique et nanométrique.

Il faut noter que la pression du gaz à l'intérieur d'une bulle sub-micrométrique est très élevée ( $\Delta P = \frac{2\sigma}{r}$ , avec  $r$  le rayon de la bulle), ce qui peut conduire à la dissolution de bulles d'air dans l'eau. Dans le but d'améliorer ce comportement, il pourra être nécessaire de remplacer l'air par un gaz moins soluble dans l'eau.

Au niveau des applications, il est clair qu'il faut étudier davantage l'interaction entre les bulles d'air dans l'eau et l'onde acoustique afin de mieux comprendre la cause des modifications de la transmittance acoustique du système. Ces études ouvriront la voie à des nouveaux travaux dans le domaine de la micro-acousto-fluidique.

D'autre part, une application électrique du système microfluidique est exploitable en utilisant comme régime de génération, le régime balloon. Pour cela, nous cherchons à montrer que la capacité diélectrique du système varie en fonction de la densité de gouttelettes d'huile dans le microcanal de la phase continue.

L'intérêt de l'utilisation du régime balloon dans ce type d'application vient du fait que la distance entre deux gouttelettes consécutives (densité de gouttelettes) est facilement contrôlable en variant la vitesse de la phase continue (à une vitesse constante de la phase dispersée). Ce qui n'est pas le cas avec les autres régimes connus de génération de gouttelettes.

La capacité diélectrique d'un matériau est donné par :

$$C = \epsilon_0 \epsilon_r \frac{A}{d} \quad (1)$$

avec  $\epsilon_0$  la permittivité du vide =  $8,854187 \cdot 10^{-12}$  F/m,  $\epsilon_r$  la permittivité relative du diélectrique,  $A$  la surface du microcanal et  $d$  l'épaisseur du matériau.

La capacité diélectrique du système fluide étant proportionnelle à la permittivité relative du fluide va varier entre la capacité diélectrique de l'eau et celle de l'huile. Plus précisément, la valeur maximale de la capacité diélectrique du système est celle où le microcanal est totalement rempli d'eau. Au fur et à mesure qu'il se remplit de gouttelettes d'huile, sa

capacité diélectrique diminue mais tout en restant supérieure à celle où le microcanal est totalement rempli d'huile.

Pour compléter le condensateur, il faut pouvoir placer deux électrodes de part et d'autre du microcanal de la phase continue comme le montre la figure 1.

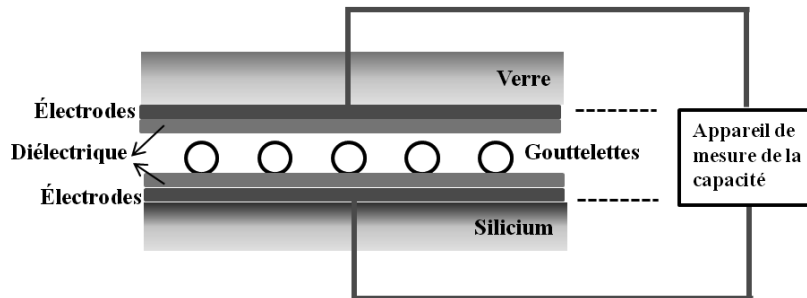


FIGURE 1 – Schéma représentatif de la mesure de la capacité diélectrique du système composé de gouttelettes.

La permittivité relative de l'eau étant  $\epsilon_r = 80$  et celle de l'huile de silicone  $\epsilon_r = 2,5$ , on peut faire varier la capacité d'un facteur  $> 30$  entre ces deux cas extrêmes (on néglige en première approche l'effet des couches diélectriques). La valeur absolue de la capacité dépendra de la surface des électrodes et des microcanaux.

Au final, si la microfluidique diphasique a été bien exploitée en optique/photonique, on voit qu'il reste beaucoup d'opportunités dans d'autres domaines de la science et de l'ingénierie !

# BIBLIOGRAPHIE

- [1] G. M. Whitesides, "The origins and the future of microfluidics," *Nature*, vol. 442, pp. 368–373, 2006.
- [2] R. Mezzenga, P. Schurtenberger, A. Burbridge, and M. Michel, "Understanding foods as soft materials," *Nature Materials*, vol. 4, pp. 729–740, 2005.
- [3] M. Antonietti and K. Tauer, "Ninety years of polymer latexes and heterophase polymerization : more vital than ever," *Macromolecular Chemistry and Physics*, vol. 204, pp. 207–219, 2003.
- [4] T. Tadros, "Industrial applications of dispersions," *Advances in Colloid and Interface Science*, vol. 46, pp. 1–47, 1993.
- [5] V. Reddy, S. Yang, and J. Zahn, "Organic/aqueous two phase microflow for biological sample preparation," in *7th International Conference on Miniaturized Chemical and Biochemical Analysis Systems*, 2003.
- [6] J. Vykoukal, J. A. Schwartz, F. F. Becker, and P. R. C. Gascoyne, "A programmable dielectrophoretic fluid processor for droplet-based chemistry," in *Proceedings of Micro Total Analysis Systems*, 2001.
- [7] M. Hashimoto, B. Mayers, P. Garstecki, and G. M. Whitesides, "Flowing lattices of bubbles as tunable, self-assembled diffraction gratings," *Small*, vol. 2, pp. 1292–1298, 2006.
- [8] N. Nguyen, S. Lassemono, F. Chollet, and C. Yang, "Interfacial tension measurement with an optofluidic sensor," *IEEE Sensors*, vol. 7, pp. 692–697, 2007.
- [9] D. Psaltis, S. R. Quake, and C. Yang, "Developing optofluidic technology through the fusion of microfluidics and optics," *Nature*, vol. 442, pp. 381–386, 2006.
- [10] C. Monat, P. Domachuk, and B. J. Eggleton, "Integrated optofluidics : A new river of light," *Nature Photonics*, vol. 1, pp. 106–114, 2007.
- [11] V. F. K. Bjerkne, *Fields of force*. Columbia University Press, New York, 1906.
- [12] T. M. Squires and S. R. Quake, "Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale," *Reviews of Modern physics*, vol. 77, pp. 977–1026, 2005.
- [13] P. Gravesen, J. Branebjerg, and O. S. Jensen, "Microfluidics—a review," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 3, pp. 168–182, 1993.
- [14] S. Shoji and M. Esashi, "Microflow devices and systems," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 4, pp. 157–171, 1994.
- [15] C. Chen, Y. Zhu, P. Leech, and R. Manasseh, "Production of monodispersed micro sized bubbles at high rates in a microfluidic device," *Journal of Applied physics*, vol. 95, p. 144101, 2009.
- [16] D. Rabaud, *Manipulation et interaction de micro-bulles sous champ acoustique : Applications aux laboratoires sur puce*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2010.
- [17] A. Ajdari, "Steady flows in networks of microfluidic channels : building on the analogy with electrical circuits," *C.R. Physique*, vol. 5, pp. 539–546, 2004.
- [18] G. Hestroni, *Handbook on multiphase flows*. Clarendon Press, 1980.
- [19] A. L. Dessimoz, L. Cavin, A. Renken, and L. Kiwi-Minsker, "Liquid-liquid two-phase flow patterns and mass transfer characteristics in rectangular glass microreactors," *Chemical Engineering Science*, vol. 63, pp. 4035–4044, 2008.
- [20] P. Guillot and A. Colin, "Stability of parallel flows in a microchannel after a T-junction," *Physical Review E*, vol. 72, p. 066301, 2005.

- [21] P. Guillot, A. Colin, A. Utada, and A. Ajdari, "Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low reynolds number," *Physical Review Letters*, vol. 99, p. 104502, 2007.
- [22] P. Paik, V. K. Pamula, and R. B. Fair, "Rapid droplet mixers for digital microfluidic systems," *Lab Chip*, vol. 3(4), pp. 253–259, 2003.
- [23] C. N. Baroud, J.-P. Delville, F. Gallaire, and R. Wunenburger, "Thermocapillary valve for droplet production and sorting," *Physical Review E*, vol. 75, p. 046302, 2007.
- [24] P. B. Umbanhowar, V. Prasad, and D. A. Weitz, "Monodisperse emulsion generation via drop break off in a coflowing stream," *Langmuir*, vol. 16, pp. 347–351, 2000.
- [25] A. S. Utada, A. Fernandez-Nieves, J. M. Gordillo, and D. A. Weitz, "Absolute instability of a liquid jet in a coflowing stream," *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 014502, 2008.
- [26] C. Cramer, P. Fischer, and E. J. Windhab, "Drop formation in a co-flowing ambient fluid," *Chemical Engineering Science*, vol. 59, pp. 3045–3058, 2004.
- [27] Y. Hong and F. Wang, "Flow rate effect on droplet control in a co-flowing microfluidic device," *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 3, pp. 341–346, 2007.
- [28] R. Xiong, M. Bai, and J. Chung, "Formation of bubbles in a simple co-flowing micro-channel," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 17, pp. 1002–1011, 2007.
- [29] S. Anna, N. Bontoux, and H. Stone, "Formation of dispersions using flow focusing in microchannels," *Applied Physics Letters*, vol. 82, pp. 364–366, 2003.
- [30] Q. Xu and M. Nakajima, "The generation of highly monodisperse droplets through the breakup of hydrodynamically focused microthread in a microfluidic device," *Applied Physics Letters*, vol. 85, pp. 3726–3728, 2004.
- [31] T. Ward, M. Faivre, M. Abkarian, and H. A. Stone, "Microfluidic flow focusing : Drop size and scaling in pressure versus flow-rate-driven pumping," *Electrophoresis*, vol. 26, pp. 3716–3724, 2005.
- [32] L. Yobas, S. Martens, W.-L. Ong, and N. Ranganathan, "High-performance flow-focusing geometry for spontaneous generation of monodispersed droplets," *Lab on Chip*, vol. 6, pp. 1073–1079, 2006.
- [33] T. Fu, Y. Ma, D. Funfschilling, and H. Z. Li, "Bubble formation and breakup mechanism in a microfluidic flow-focusing device," *Chemical Engineering Science*, vol. 64, pp. 2392–2400, 2009.
- [34] A. M. Gañán-Calvo and J. M. Gordillo, "Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing," *Physical Review Letters*, vol. 87, p. 274501, 2001.
- [35] S. V. der Graaf, M. L. J. Steegmans, R. G. M. V. der Sman, C. G. P. H. Schroen, and R. M. Boom, "Droplet formation in a T-shaped microchannel junction : A model system for membrane emulsification," *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 266, pp. 106–116, 2005.
- [36] J. H. Xu, S. W. Li, Y. J. Wang, and G. S. Luo, "Controllable gas-liquid phase flow patterns and monodisperse microbubbles in a microfluidic T-junction device," *Journal of Applied physics*, vol. 88, p. 133506, 2006.
- [37] T. Thorsen, R. Roberts, F. H. Arnold, and S. R. Quake, "Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device," *Physical Review Letters*, vol. 86, pp. 4163–4166, 2001.
- [38] T. Nisisako, T. Torii, and T. Higuchi, "Droplet formation in a microchannel network," *Lab on a chip*, vol. 2, pp. 24–26, 2002.
- [39] J. Tan, S. Li, K. Wang, and G. Luo, "Gas liquid flow in T-junction microfluidic devices with a new perpendicular rupturing flow route," *Chemical Engineering Journal*, vol. 146, pp. 428–433, 2009.
- [40] S. Yeom and S. Y. Lee, "Dependence of micro-drop generation performance on dispenser geometry," *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 35, pp. 1565–1574, 2011.
- [41] C. X. Zhao and A. P. Middelberg, "Two-phase microfluidic flows," *Chemical Engineering Science*, vol. 66, pp. 1394–1411, 2011.



- [42] J. Tan, J. Xu, S. Li, and G. Luo, "Drop dispenser in a cross-junction microfluidic device : Scaling and mechanism of break-up," *Chemical Engineering Journal*, vol. 136, pp. 306–311, 2008.
- [43] S. Yeom and S. Y. Lee, "Size prediction of drops formed by dripping at a micro T-junction in liquid-liquid mixing," *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 35, pp. 387–394, 2011.
- [44] L. Wang, Y. Zhang, and L. Cheng, "Magic microfluidic T-junctions : Valving and bubbling," *Chaos, Solitons and Fractals*, vol. 39, p. 1530–1537, 2009.
- [45] P. Garstecki, M. J. Fuerstman, and G. M. Whitesides, "Nonlinear dynamics of a flow-focusing bubble generator : An inverted dripping faucet," *Physical Review Letters*, vol. 94, p. 234502, 2005.
- [46] L. A. Shelley and C. M. Hans, "Microscale tipstreaming in a microfluidic flow focusing device," *Physics of Fluids*, vol. 18, p. 121512, 2006.
- [47] F. Malloggi, N. Pannacci, R. Attia, F. Monti, P. Mary, H. Willaime, and P. Tabeling, "Monodisperse colloids synthesized with nanofluidic technology," *Langmuir*, vol. 4, pp. 2369–2373, 2010.
- [48] G. I. Taylor, "The formation of emulsions in definable fields of flow," *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, vol. 146 (858), pp. 501–523, 1934.
- [49] J. H. Xu, S. W. Li, J. Tan, Y. J. Wang, and G. S. Luo, "Correlations of droplet formation in T-junction microfluidic devices : from squeezing to dripping," *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 5, pp. 711–717, 2008.
- [50] T. Fu, Y. Ma, D. Funfschilling, C. Zhu, and H. Z. Li, "Squeezing to dripping transition for bubble formation in a microfluidic T-junction," *Chemical Engineering Science*, vol. 65, pp. 3739–3748, 2010.
- [51] S. Peng and R. Williams, "Controlled production of emulsions using a cross flow membrane : Part I : Droplet formation from a single pore," *Chemical Engineering Research and Design*, vol. 76 (8), pp. 894–901, 1998.
- [52] S. van der Graaf, T. Nisisako, C. G. P. H. Schroen, R. G. M. van der Sman, and R. M. Boom, "Lattice boltzmann simulations of droplet formation in a T-shaped microchannel," *Langmuir*, vol. 22, pp. 4144–4152, 2006.
- [53] P. Garstecki, M. J. Fuerstman, H. A. Stonec, and G. M. Whitesides, "Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction scaling and mechanism of break-up," *Lab on chip*, vol. 6, pp. 437–446, 2006.
- [54] G. F. Christopher, N. N. Noharuddin, J. A. Taylor, and S. L. Anna, "Experimental observations of the squeezing-to-dripping transition in T-shaped microfluidic junctions," *Physical Review E*, vol. 78, p. 036317, 2008.
- [55] S. Yeom and S. Lee, "Droplet formation by dripping at micro T-junction in liquid liquid mixing," in *Proceedings of ICNMM2008, FEDSM-ICNMM2010-30398*, 2008.
- [56] T. Cubaud and T. G. Mason, "Capillary threads and viscous droplets in square microchannels," *Physics of Fluids*, vol. 20, p. 053302, 2008.
- [57] J. Sivasamy, T.-N. Wong, N.-T. Nguyen, and L. T.-H. Kao, "An investigation on the mechanism of droplet formation in a microfluidic T-junction," *Microfluid Nanofluid*, vol. 11, pp. 1–10, 2011.
- [58] Z. Nie, M. Seo, S. Xu, P. Lewis, M. Mok, E. Kumacheva, G. Whitesides, P. Garstecki, and H. Stone, "Emulsification in a microfluidic flow-focusing : effect of the viscosities of the fluids," *Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 5, pp. 585–594, 2008.
- [59] I. Kobayashi, S. Mukataka, and M. Nakajima, "Effects of type and physical properties of oil phase on oil in water emulsion droplet formation in straight through microchannel emulsification, experimental and cfd studies.," *Langmuir*, vol. 21, pp. 5722–5730, 2005.
- [60] J. Husny and J. Cooper-White, "The effect of elasticity on drop creation in T-shaped microchannels," *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 137, pp. 121–136, 2006.

- [61] J. Wacker, V.K. Parashar, and M.A.M. Gijs, "Influence of oil type and viscosity on droplet size in a flow-focusing microfluidic device," *Procedia Chemistry*, vol. 1, pp. 1083–1086, 2009.
- [62] W. Griffin, "Calculation of HLB values of non-ionic surfactants," *Journal of the Society of Cosmetic Chemists*, vol. 5, pp. 249–235, 1954.
- [63] J. Xu, S. Li, J. Tan, Y. Wang, and G. Luo, "Controllable preparation of monodisperse o/w and w/o emulsions in the same microfluidic device," *Langmuir*, vol. 22, pp. 7943–7946, 2006.
- [64] M. Kukizaki and Y. Baba, "Effect of surfactant type on microbubble formation behavior using shirasu porous glass (SPG) membranes," *Colloids and Surfaces A*, vol. 326, pp. 129–137, 2008.
- [65] R. Dreyfus, P. Tabeling, and H. Willaime, "Ordered and disordered patterns in two-phase flows in microchannels," *Physical Review Letters*, vol. 90, p. 14, 2003.
- [66] R. Butler, I. Hopkinson, and A. I. Cooper, "Synthesis of porous emulsion-templated polymers using high internal phase CO<sub>2</sub>-in-water emulsions," *Journal of the American Chemical Society*, vol. 125, pp. 14473–14481, 2003.
- [67] Y.-C. Tan, V. Cristini, and A. P. Lee, "Monodispersed microfluidic droplet generation by shear focusing microfluidic device," *Sensors and Actuators B*, vol. 114, pp. 350–356, 2006.
- [68] M. Bouquey, C. Serra, N. Berton, L. Prat, and G. Hadziioannou, "Microfluidic synthesis and assembly of reactive polymer beads to form new structured polymer materials," *Chemical Engineering Journal*, vol. 135S, pp. S93–S98, 2008.
- [69] S. Sugiura, M. Nakajima, and M. Seki, "Effect of channel structure on microchannel emulsification," *Langmuir*, vol. 18, pp. 5708–5712, 2002.
- [70] A. Gupta and R. Kumar, "Effect of geometry on droplet formation in the squeezing regime in a microfluidic T-junction," *Microfluidic Nanofluidic*, vol. 8, pp. 799–812, 2010.
- [71] A. Gavriilidis, P. Angeli, E. Cao, K. K. Yeong, and Y. S. S. Wan, "Technology and applications of microengineered reactors," *Chemical engineering research and design*, vol. 80, pp. 3–30, 2002.
- [72] Z. T. Cygan, J. T. Cabral, K. L. Beers, and E. J. Amis, "Microfluidic platform for the generation of organic-phase microreactors," *Langmuir*, vol. 21, pp. 3629–3634, 2005.
- [73] R. Barrett, M. Faucon, J. Lopez, G. Cristobal, F. Destremaut, A. Dodge, P. Guillot, P. Laval, C. Masselonc, and J.-B. Salmon, "X-ray microfocussing combined with microfluidics for on-chip x-ray scattering measurements," *Lab on a Chip*, vol. 6, pp. 494–499, 2006.
- [74] J. C. McDonald and G. M. Whitesides, "Poly(dimethylsiloxane) as a material for fabricating microfluidic devices," *Accounts of chemical research*, vol. 35, pp. 491–499, 2002.
- [75] J. M. K. Ng, I. Gitlin, A. D. Stroock, and G. M. Whitesides, "Components for integrated poly(dimethylsiloxane) microfluidic systems," *Electrophoresis*, vol. 23, pp. 3461–3473, 2002.
- [76] J. N. Lee, C. Park, and G. M. Whitesides, "Solvent compatibility of poly(dimethylsiloxane)-based microfluidic devices," *Analytical Chemistry*, vol. 75, pp. 6544–6554, 2003.
- [77] I.-J. Chen and E. Lindner, "The stability of radio-frequency plasma-treated polydimethylsiloxane surfaces," *Langmuir*, vol. 23, pp. 3118–3122, 2007.
- [78] H. Hillborg, N. Tomczak, A. Oláh, H. Schonherr, and G. J. Vancso, "Nanoscale hydrophobic recovery : A chemical force microscopy study of UV/ozone-treated cross-linked poly(dimethylsiloxane)," *Langmuir*, vol. 20, pp. 785–794, 2004.
- [79] T. R. Dietrich, A. Freitag, and R. Scholz, "Production and characteristics of microreactors made from glass," *Chemical Engineering Technology*, vol. 28, pp. 477–483, 2005.
- [80] C. Thibault, "Impression de biomolécules par lithographie douce, applications pour les bio-puces, de l'échelle micrométrique à nanométrique," Master's thesis, Université de Toulouse, 2007.
- [81] P. Voisin, "Lithographie de nouvelle génération par nanoimpression assistée par uv : étude et développement de matériaux et procédés pour l'application microélectronique," Master's thesis, Université Joseph Fourier de Grenoble, 2007.
- [82] J. Venuat, "Etude statique et dynamique du renversement d'aimantation de petits objets d'anisotropie perpendiculaire," Master's thesis, Université Louis Pasteur de Strasbourg, 2006.

- [83] P. Ginet, "Conception et élaboration de microstructures en technologie hybride couche épaisse pour des applications MEMS," Master's thesis, Université de Bordeaux 1, 2009.
- [84] J. W. Coburn and H. F. Winters, "Ion and electron-assisted gas-surface chemistry – an important effect in plasma etching," *Journal of Applied physics*, vol. 50(5), pp. 3189–3196, 1979.
- [85] J. W. Coburn and H. F. Winters, "Plasma etching – a discussion of mechanisms," *Journal of Vacuum Science and Technology*, vol. 16(2), pp. 391–403, 1979.
- [86] I. W. Rangelow and H. Loschner, "Reactive ion etching for microelectrical mechanical system fabrication," *Journal of Vacuum Science and Technology B*, vol. 13(6), p. B, 1995.
- [87] M. Carette, "Etude des propriétés remarquables de nanofils optiques in p/polymère en vue de la réalisation de fonctions optoélectroniques hyperfréquences," Master's thesis, Université des sciences et technologies Lille, 2008.
- [88] K. Schjoberg-Henriksen, G. Jensen, A. Hanneborg, and H. Jakobsen, "Anodic bonding for monolithically integrated MEMS," *Sensors and Actuators A*, vol. 114, pp. 332–339, 2004.
- [89] G. Blasquez and P. Favaro, "Silicon glass anodic bonding under partial vacuum conditions : problems and solutions," *Sensors and Actuators A*, vol. 101, pp. 156–159, 2002.
- [90] M. Chena, L. Yuan, and S. Liu, "Research on low-temperature anodic bonding using induction heating," *Sensors and Actuators A*, vol. 133, pp. 266–269, 2007.
- [91] T. Rogers and J. Kowal, "Selection of glass, anodic bonding conditions and material compatibility for silico-glass capacitive sensors," *Sensors and Actuators A*, vol. 46–47, pp. 113–120, 1995.
- [92] Z. Kadar, "Integrated resonant magnetic field sensor," Master's thesis, Delft University, 1997.
- [93] M. Seo, Z. Nie, S. Xu, P. C. Lewis, and E. Kumacheva, "Microfluidics : From dynamic lattices to periodic arrays of polymer disks," *Langmuir*, vol. 21, p. 11, 2005.
- [94] W.-L. Ong, J. Hua, B. Zhang, T.-Y. Teo, J. Zhuo, N.-T. Nguyen, N. Ranganathan, and L. Yobas, "Experimental and computational analysis of droplet formation in a high-performance flow-focusing geometry," *Sensors and Actuators A*, vol. 138, pp. 203–212, 2007.
- [95] R. M. Lorenz, G. S. Fiorini, G. D. Jeffries, D. S. W. Lim, M. He, and D. T. Chiu, "Simultaneous generation of multiple aqueous droplets in a microfluidic device," *Analytica Chimica Acta*, vol. 630, pp. 124–130, 2008.
- [96] L. Shui, F. Mugele, A. V. den berg, and J. C. T. Eijkel, "Geometry-controlled droplet generation in head-on microfluidic devices," *Journal of Applied physics*, vol. 93, p. 153113, 2008.
- [97] J. Liow, "Numerical simulation of drop formation in a T-shaped microchannel," in *15th Australasian Fluid Mechanics Conference*, 2004.
- [98] K. Dopierala, A. Javadi, J. Kragel, K.-H. Schano, E. Kalogiannid, M. Leser, and R. Miller, "Dynamic interfacial tensions of dietary oils," *Colloids and Surfaces A*, vol. 382, pp. 261–265, 2011.
- [99] L. . A. Girifalco and R. J. Good, "A theory for the estimation of surface and interfacial energies. derivation and application to interfacial tension," *The journal of physical chemistry*, vol. 61, pp. 904–909, 1957.
- [100] D. Lauvernier, J.-P. Vilcot, M. François, and D. Decoster, "Optimization of HSQ resist e-beam processing technique on gaas material," *Microelectronic Engineering*, vol. 75, pp. 77–182, 2004.
- [101] J. C. McDonald, D. C. Duffy, J. R. Anderson, D. T. Chiu, H. Wu, O. J. A. Schueller, and G. M. Whitesides, "Fabrication of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane)," *Electrophoresis*, vol. 21, pp. 27–40, 2000.
- [102] C. Yang, Z. R. Xu, and J. H. Wang, "Manipulation of droplets in microfluidic systems," *Trends in Analytical Chemistry*, vol. 29, p. 2, 2010.
- [103] J. H. Xu, G. S. Luo, S. W. Li, and G. G. Chen, "Shear force induced monodisperse droplet formation in a microfluidic device by controlling wetting properties," *Lab on a Chip*, vol. 6, p. 131, 2006.

- [104] S. A. Soper, S. M. Ford, S. Qi, R. L. McCarley, K. Kelly, and M. C. Murphy, "Polymeric microelectromechanical systems," *Analytical Chemistry*, vol. 72, pp. 642A–651A., 2000.
- [105] H. Becker and C. Gartner, "Polymer microfabrication methods for microfluidic analytical applications," *Electrophoresis*, vol. 21, pp. 12–26, 2000.
- [106] N. Tarchichi, F. Chollet, and J.-F. Manceau, "New regime of droplet generation in a T-shape microfluidic junction," *Journal of Microfluidics and Nanofluidics*, vol. 14, pp. 45–51, 2013.
- [107] N. Tarchichi, F. Chollet, and J.-F. Manceau, "Dispersed phase velocity controlled regime of micro-droplets generation in T-junction," in *Proceedings of the third European Conference on Microfluidics*, 2012.
- [108] M. D. Menech, P. Garstecki, F. Jousse, and H. A. Stone, "Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction," *journal of fluid mechanics*, vol. 595, pp. 141–161, 2008.
- [109] W. Park and J. Lee, "Mechanically tunable photonic crystal structure," *Applied Physics Letters*, vol. 85, pp. 4845–4847, 2004.
- [110] D. Erickson, T. Rockwood, T. Emery, A. Scherer, and D. Psaltis, "Nanofluidic tuning of photonic crystal circuits," *Optics Letters*, vol. 31, pp. 59–61, 2006.
- [111] B. Li, J. Zhou, L. Li, X. Wang, X. Liu, and J. Zi, "Ferroelectric inverse opals with electrically tunable photonic band gap," *Applied Physics Letters*, vol. 83, p. 4704, 2003.
- [112] R. Xiong and J. N. Chung, "Bubble generation and transport in a microfluidic device with high aspect ratio," *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 33, pp. 1159–1162, 2009.
- [113] M. J. Rosen, *Surfactants and interfacial phenomena*. John Wiley & Sons, 2004.
- [114] S. Sinzinger and J. Jahns, *Microoptics*. Wiley–VCH, 2003.
- [115] H. Lamb, *Hydrodynamics*. Cambridge, 1932.
- [116] V. Leroy, A. Bretagne, M. Fink, and A. Tourin, "Design and characterization of bubble phononic crystals," *Applied Physics Letters*, vol. 95, p. 17, 2009.
- [117] M. Minnaert, "On musical air-bubbles and the sound of running water," *Philosophical Magazine*, vol. 16, pp. 235–248, 1933.
- [118] L. Shui, E. S. Kooij, D. Wijnperle, A. V. den berg van den, and J. C. T. Eijkel, "Liquid crystallography : 3D microdroplet arrangement using microfluidics," *Soft Matter*, vol. 5, pp. 2708–2712, 2009.
- [119] C. Priest, S. Herminghaus, and R. Seemann, "Generation of monodisperse gel emulsions in a microfluidic device," *Applied Physics Letters*, vol. 88, p. 024106, 2006.

# A

## POUSSE-SERINGUE

Dans cette annexe, nous présentons le principe de fonctionnement d'un pousse-seringue puis nous donnons les valeurs minimales et maximales des débits qui peuvent être imposés par le pousse-seringue Harvard apparatus 11 plus, en fonction de la taille de la seringue utilisée.

Les seringues utilisées dans le cadre de cette thèse ont des volumes de 1 ; 2,5 ; 3 et 5 mL.

– Principe de fonctionnement :

Le système est composé des parties mécaniques, électriques et électroniques. La partie mécanique sert du support pour les différents types de seringues et est mue par un moteur électrique qui fait progresser régulièrement le piston de la seringue grâce à une vis sans fin. Enfin la partie électronique gère la programmation des débits, des volumes... On remarque que le vis sans fin est actionné par un moteur pas à pas qui impose un avancement minimum de pousse-seringue, limitant ainsi son utilisation à très bas débit.

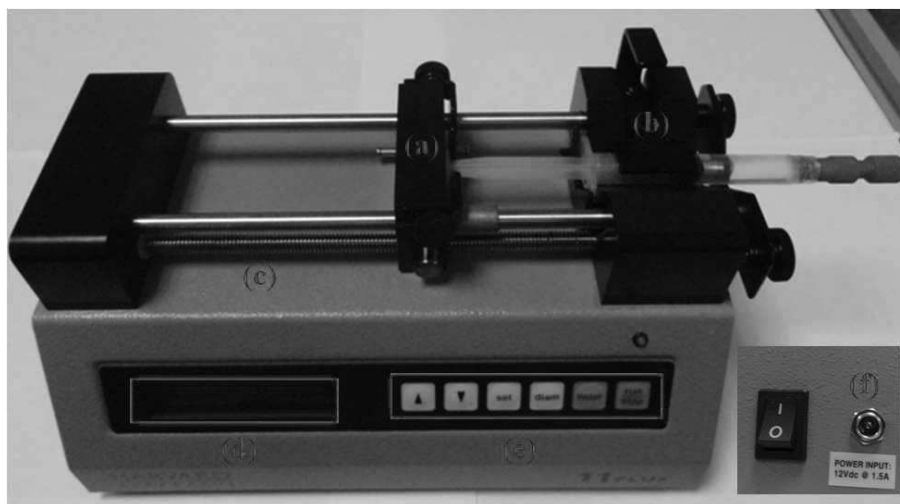


FIGURE A.1 – Composition d'un pousse-seringue avec : pince pour la seringue (a), clamp détection de la taille de seringue (b), vis composé de pas (c), écran d'affichage (d), clavier de commande (e), alimentation électrique du moteur (f).

– Débits imposés :

En fonction du diamètre de la seringue utilisée, les débits maximums et minimums imposés par le pousse-seringue sont différents. La table suivante résume les différentes valeurs.

| Taille de la seringue | Diamètre<br>(mm) | Débit minimal<br>( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) | Débit maximal<br>( $\mu\text{L}/\text{min}$ ) |
|-----------------------|------------------|---|---|
| 1 $\mu\text{L}$       | 0,15             | 0,0001  | 0,8383  |
| 2 $\mu\text{L}$       | 0,21             | 0,0002  | 1,6430  |
| 5 $\mu\text{L}$       | 0,33             | 0,0003  | 4,057   |
| 10 $\mu\text{L}$      | 0,46             | 0,0005  | 7,883   |
| 25 $\mu\text{L}$      | 0,73             | 0,0013  | 19,85   |
| 50 $\mu\text{L}$      | 1,03             | 0,0025  | 39,52   |
| 100 $\mu\text{L}$     | 1,46             | 0,0049  | 79,41   |
| 250 $\mu\text{L}$     | 2,30             | 0,0121  | 197   |
| 1 mL                  | 4,61             | 0,0484  | 791,8   |
| 2,5 mL                | 7,28             | 0,1206  | 1974  |
| 3 mL                  | 8,66             | 0,1706  | 2794  |
| 5 mL                  | 10,30            | 0,2413  | 3952  |

TABLE A.1 – Valeurs maximales et minimales des débits imposés par le pousse-seringue en fonction de la taille de la seringue utilisée.

# B

## ANALYSE D'IMAGE AVEC IMAGEJ

Dans cette annexe, nous présentons la méthode utilisée pour mesurer expérimentalement l'évolution de la surface de la gouttelette lors de sa formation, ainsi que les temps correspondants. Cette mesure se fait en utilisant le logiciel ImageJ.

En ce qui se suit, nous montrons un exemple de calcul de la surface de la gouttelette au stade II ( $S_{II}$ ) générée en régime dripping dans le dispositif microfluidique ayant les dimensions suivantes :  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ . Les conditions des vitesses des liquides sont :  $\bar{v}_c = 7,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ .

Dans ces conditions, le diamètre final de la gouttelette est  $d = 128 \mu\text{m}$ , ce qui correspond à une surface finale  $S_f = \pi \frac{d^2}{4} = 12,87 \cdot 10^{-9} \text{m}^2$ .

En utilisant le logiciel ImageJ, cette surface est donnée en pixels et est égale à 17092 pixels (figure B.1).

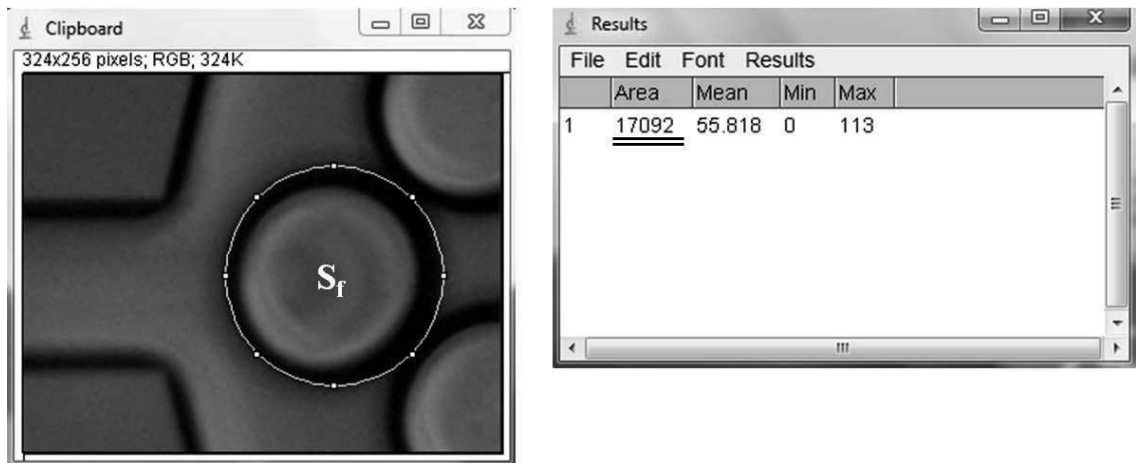


FIGURE B.1 – Surface finale de la gouttelette mesurée en utilisant le logiciel ImageJ, avec :  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_c = 7,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ .

Donc, nous pouvons dire que  $1 \text{ pixel} = 7,53 \cdot 10^{-13} \text{m}^2$ . Cette unité sera utilisée pour la conversion de pixels en  $\text{m}^2$ .

La surface de la gouttelette au stade II est représentée par la figure B.2. Nous pouvons tirer ainsi la valeur  $S_{II} = 5,96 \cdot 10^{-9} \text{m}^2$ .

En terme du temps, la détermination de ce dernier pour le stade II se fait de la manière suivante :

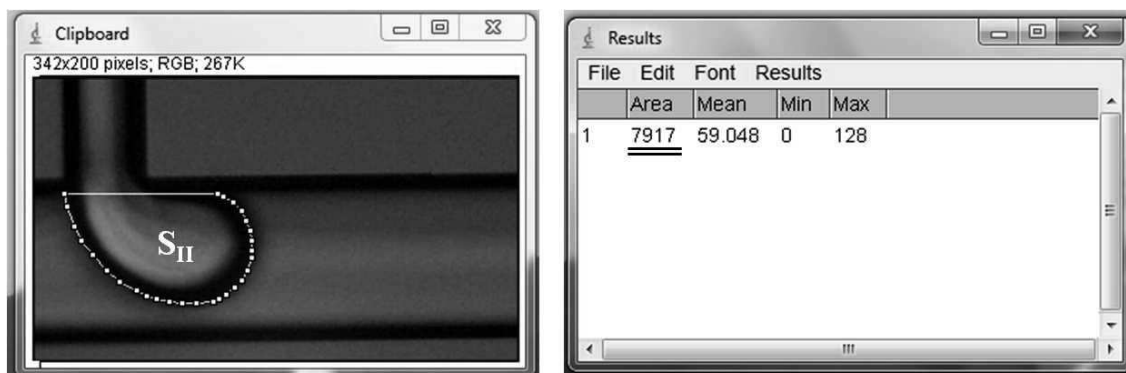


FIGURE B.2 – Surface de la gouttelette au stade II mesurée en utilisant le logiciel ImageJ, avec :  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 50 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_c = 7,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ .

La fréquence de génération de la gouttelette est  $f = 59$  gouttelettes/s, donc une seule gouttelette ayant une surface de  $12,87 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$  met 17 ms pour se former.

La surface de la gouttelette au stade II comme nous avons mentionné ci-dessus est :  $S_{II} = 5,96 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$ . Cela correspond donc à  $t_{II} = 8 \text{ ms}$ .

De la même manière, nous avons calculé la surface de la gouttelette au stade II en conservant les mêmes conditions expérimentales d'auparavant et en changeant uniquement  $w_d = 20 \mu\text{m}$ . Nous trouvons ainsi  $S_{II} = 5,99 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$  (figure B.3).

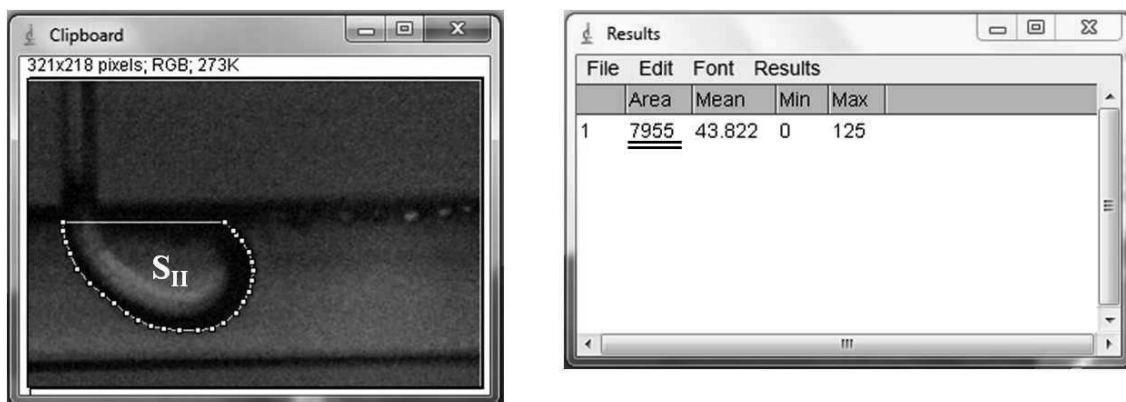


FIGURE B.3 – Surface de la gouttelette au stade II mesurée en utilisant le logiciel ImageJ, avec :  $w_c = 100 \mu\text{m}$ ,  $w_d = 20 \mu\text{m}$ ,  $h = 46 \mu\text{m}$ ,  $\bar{v}_c = 7,5 \text{ cm/s}$  et  $\bar{v}_d = 1,5 \text{ cm/s}$ .

La comparaison entre la surface de la gouttelette au stade II dans les cas où  $w_d = 20 \mu\text{m}$  et  $w_d = 50 \mu\text{m}$ , montre que ces deux surfaces sont égales (écart = 0,7 %), ce qui est en accord avec le mécanisme proposé en régime dripping (paragraphe 3.6).

En se basant sur les données :  $S_{II} = 9,16 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$  et  $f = 33$  gouttelettes/s, le temps au stade II a été aussi calculé et nous avons trouvé :  $t_{II} = 19 \text{ ms}$ .





## Résumé :

Depuis ces dernières années, il y a eu augmentation de l'effort pour le développement des systèmes microfluidiques dédiés à la dispersion d'une phase fluide dans une autre phase fluide immiscible. Les gouttelettes ou les bulles résultantes ont de nombreuses applications dans des divers domaines (photonique, chimique, biologique...). Pour la plupart de ces applications, il est primordial de contrôler la taille et la forme de ces gouttelettes/bulles, paramètres qui influencent directement le comportement ou la réponse du système.

Notre but consiste ainsi à générer des gouttelettes de taille unique (monodispersées) et contrôlable pour produire des structures accordables. Nous analysons aussi leurs mécanismes de formation et étudions les paramètres qui influent sur leur taille et leur forme.

Dans le présent travail, la génération de gouttelettes est réalisée en utilisant une intersection entre deux microcanaux (jonction en T) où leur taille est directement liée à la géométrie. Dans cette configuration, il existe trois régimes connus de génération de gouttelettes qui sont les régimes de dripping, squeezing et jetting. Nous nous sommes particulièrement intéressés à l'étude du régime dripping car il assure la génération de gouttelettes ayant une taille plus petite que celle obtenue avec les autres régimes. Les expériences et les études théoriques ont montré que le diamètre des gouttelettes diminue quand la largeur des canaux diminue, quand la vitesse de la phase continue augmente et quand la vitesse de la phase dispersée diminue. De plus, nous avons pu mettre en évidence un nouveau régime de génération de gouttelettes pour lequel les gouttelettes générées ont un diamètre constant, indépendamment des vitesses des phases continue et dispersée, et qui ne dépend que de la géométrie des canaux. Nous avons appelé ce nouveau régime le régime "balloon".

Nous avons enfin montré l'intérêt de l'accordabilité des systèmes microfluidiques en optique et en acoustique. Ainsi, nous avons montré que la période du réseau de diffraction optique est facilement modifiable en contrôlant les paramètres de génération de bulles. De même, nous avons pu voir que la réponse acoustique est liée à la résonance des bulles dans le milieu liquide. Cette réponse est une fonction du diamètre des bulles générées. Enfin, nous proposons l'utilisation du système microfluidique en électronique pour produire des capacités variables, ouvrant la voie à des nouvelles fonctionnalités pour la microfluidique diphasique.

## Abstract:

Since the past few years, there has been an increasing effort in developing microfluidic devices for dispersing one fluid phase in another immiscible fluid phase. Microfluidic bubbles or droplets have many applications in different fields such as photonics, chemistry, biology... For most of these applications, it is important to control the size and the shape of these droplets or bubbles, since they directly influence the response of the system.

Our goal is to generate monodisperse and controllable droplets to produce tunable structures. We also analyze their formation mechanisms and study the parameters that affect their size and their shape. In the present work, we use T-junction geometry to generate droplets of uniform size. In this configuration, there are three known regimes of droplet generation: dripping, squeezing and jetting regimes. We are particularly interested in the study of the dripping regime since it ensures the generation of droplets of smaller size compared to the other regimes. The experimental and the theoretical studies have shown that the droplets diameter decreases when the channels width decreases, when the continuous phase velocity increases and when the dispersed phase velocity decreases. In addition, we have shown evidence of a new regime of droplet generation in which the droplet diameter is constant, independent of the continuous and dispersed phases velocities and only related to the geometry of the T-junction channels. We named this new regime the balloon regime.

We finally demonstrated the usefulness of the tunability of microfluidic systems in optics and acoustics. Actually, we show that the diffraction grating period can be easily changed by controlling the parameters of bubble generation. We show also that the acoustic response is related to the bubbles resonance in the liquid medium. This response is a function of the bubbles diameter. Finally, we propose the use of the microfluidic system in electronics, for realizing varying capacitors, where the diphasic microfluidic opens the way to new functionalities.

# SPIM

■ École doctorale SPIM 16 route de Gray F - 25030 Besançon cedex

■ tél. +33 (0)3 81 66 66 02 ■ [ed-spim@univ-fcomte.fr](mailto:ed-spim@univ-fcomte.fr) ■ [www.ed-spim.univ-fcomte.fr](http://www.ed-spim.univ-fcomte.fr)

**UFC**  
UNIVERSITÉ  
DE FRANCHE-COMTÉ