

## **Un rhéomètre sur une puce.**

P. Guillot, A. Colin, S. Quiniou, G. Cristobal et M. Joanicot

L.O.F, Unité mixte Rhodia-CNRS FRE 2771, 178 avenue Schweitzer 33607 Pessac

C.H. Bruneau et T. Colin.

M.A.B, CNRS U.M.R 5466 et Université Bordeaux I, 351 cours de la Libération, 33405 Talence.

### **Résumé**

Nous avons mis au point un rhéomètre sur une puce microfluidique. Ce dispositif est basé sur l'étude des écoulements parallèles. Les valeurs mesurées pour des fluides newtoniens et non-newtoniens sont en bon accord avec les mesures obtenues grâce à un rhéomètre classique. Ce dispositif permettra une approche haut débit des problèmes de formulations.

Les mousses, les émulsions (mayonnaise), les phases de tensioactifs concentrées (shampooing) sont des exemples de fluides complexes que nous rencontrons quotidiennement. Ces fluides sont généralement obtenus en mélangeant différents composants : huile, eau, tensioactifs, polymères, alcool... L'art de l'ingénieur formulateur réside dans la mise au point d'une formule active ; lavante par exemple dans le cas d'un shampooing, mais aussi stable dans le temps, manipulable et possédant une texture agréable pour le consommateur. Pour réaliser cette tâche, il est nécessaire de maîtriser les propriétés mécaniques de ces formulations et d'être capable de les ajuster. En effet, les propriétés rhéologiques des fluides ont des répercussions directes sur les procédés de fabrication, de pompage et de mélange des fluides. De plus, très souvent l'application du fluide fixe des gammes de valeurs pour sa rhéologie. Il faut par exemple être capable de diminuer la viscosité d'une solution de molécules pharmaceutiques pour pouvoir l'injecter à travers des seringues à des patients ou au contraire savoir augmenter la viscosité d'une vinaigrette pour qu'elle soit plus stable dans le temps. Pour ajuster la viscosité d'une formulation, des épaississants (solutions de polymères, sels) ou des agents gélifiants (polymères, protéines) sont ajoutés à la composition. Afin de fixer précisément leur valeur, différents mélanges de compositions variables sont habituellement préparés. Leurs propriétés mécaniques sont ensuite mesurées en utilisant un rhéomètre. Les formules qui permettent d'obtenir les gammes de viscosité qui correspondent au cahier des charges sont ensuite sélectionnées et testées sur d'autres critères telles leur stabilité dans le temps.

Dans ce travail, nous proposons une approche haut débit de ce problème issu de l'industrie physico-chimiste. Nous essayons de mettre au point un rhéomètre sur une puce microfluidique.

Nous souhaitons, en utilisant très peu de fluide, être capable de mesurer la courbe d'écoulement. Notre but est de mettre au point un dispositif simple, ne comportant que très peu d'appareils externes et capable de mesurer les mêmes propriétés qu'un rhéomètre classique. Ce dernier point est important car il faut pouvoir proposer à l'ingénieur formulateur un outil qui mesure les propriétés qu'il a l'habitude de manipuler et sur lesquelles il a des repères.

Le plan de cet article est le suivant. Dans un premier temps, nous allons rappeler quelques notions de base de rhéologie des fluides complexes. La seconde partie sera consacrée à la description d'un rhéomètre classique. Nous décrirons ensuite le mode de fonctionnement de la puce microfluidique que nous avons mis en place. Enfin dans une dernière partie, nous présenterons les résultats obtenus.

## **I/ Notions de rhéologie et rhéologie des fluides complexes**

### **I/ 1 Notions de rhéologie**

L'expérience de principe pour mesurer la viscosité de cisaillement d'un fluide est la suivante [1] : entre deux plaques parallèles infinies séparées d'une distance  $e$ , on place l'échantillon à étudier. Une des plaques est ensuite tirée parallèlement à la première avec une force  $F$ . La seconde plaque est maintenue immobile. La vitesse de la plaque mobile est enregistrée. Pour des vitesses faibles, le mouvement de la plaque induit dans le fluide un écoulement laminaire de cisaillement pur. La contrainte appliquée sur le fluide est constante dans tout l'échantillon et est égale à  $\sigma = F/S$  où  $F$  est la force appliquée et  $S$  la surface de la plaque. Le taux de cisaillement appliqué sur le fluide est égal  $\dot{\gamma} = V/e$  où  $V$  est la vitesse de la plaque et  $e$  la distance entre les deux plaques. La viscosité du fluide est définie par  $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$ . Dans le cadre de fluide simple comme de l'eau, la viscosité est indépendante du taux de cisaillement ressenti. Le fluide est dit newtonien. Les fluides que nous souhaitons étudier sont différents. En effet, ces fluides sont des fluides complexes, caractérisés par l'existence d'une échelle de taille mésoscopique comprise entre la taille de la molécule et la taille de l'échantillon. Cette échelle de taille est, par exemple, la taille des gouttes dans une émulsion ou la taille des bulles dans une mousse.

### **I/2 Notion de fluides complexes**

L'existence de cette taille caractéristique entraîne un couplage entre la structure du fluide et l'écoulement [2,3]. Ainsi l'écoulement peut modifier la structure d'une émulsion ou d'une solution de polymères. La contrainte de cisaillement peut déformer les pelotes de polymères et allonger les chaînes de polymères dans le sens du champ de vitesse. Ce couplage entre la structure et l'écoulement est à l'origine d'effets non linéaires et provoque des comportements non newtoniens.

La viscosité d'une solution de polymère diminue lorsqu'on augmente la contrainte appliquée, ces solutions sont dites rhéo-fluidifiantes. A l'inverse, l'écoulement peut provoquer l'agglomération de certaines suspensions et provoquer une augmentation de la viscosité lorsque la contrainte croît. Ces suspensions sont rhéo-épaississantes. Ainsi, la réponse rhéologique d'un fluide complexe n'est pas un coefficient unique de viscosité mais une courbe de réponse appelée courbe d'écoulement. Cette courbe présente l'évolution de la contrainte en fonction du taux de cisaillement. La pente locale de la courbe est la viscosité au cisaillement considéré.

### **I/3 Principe de fonctionnement d'un rhéomètre**

A la différence d'un viscosimètre (viscosimètre à billes), un rhéomètre est un dispositif capable de mesurer la courbe d'écoulement [1]. Dans la suite, nous allons décrire le principe de fonctionnement d'un tel appareil. En géométrie de Couette (figure 1), l'échantillon est logé entre deux cylindres coaxiaux. Le cylindre extérieur (de rayon  $R_2$ ) est immobile et le cylindre intérieur (de rayon  $R_1$ ) est mobile. Il est relié par un axe à un moteur. Ce moteur impose sur l'axe un couple  $\Gamma$ . Le cylindre tourne et sa vitesse de rotation  $\Omega$  est mesurée par un encodeur optique. Grâce à ces deux mesures  $\Gamma$  et  $\Omega$ , le rhéomètre calcule, grâce à un modèle, la viscosité du fluide. Les hypothèses du modèle sont les suivantes : l'écoulement est supposé homogène et stationnaire.

Ceci permet de calculer le champ local de contrainte :

$$\sigma_{r\theta}(r) = \frac{A}{r^2} = \frac{\Gamma}{2\pi H r^2} \quad (1)$$

où  $r$  est la distance à l'axe de rotation et  $H$  la hauteur du cylindre. Ce simple calcul montre que la contrainte dépend de la position dans l'entrefer. Pour pouvoir présenter une courbe d'écoulement, le rhéomètre moyenne la contrainte selon la formule :

$$\langle \sigma_{r\theta} \rangle = \sigma_{r\theta}(R_1)/2 + \sigma_{r\theta}(R_2)/2 = \frac{\Gamma}{4\pi H} \left( \frac{1}{R_1^2} + \frac{1}{R_2^2} \right) \quad (2)$$

Le taux de cisaillement est déduit de la mesure de la vitesse de rotation en supposant que le fluide est newtonien de viscosité  $\eta$  et ne glisse pas à la paroi. Ceci permet de calculer le champ de vitesse  $v_{r\theta}(r)$  et de cisaillement au sein du fluide  $\dot{\gamma}(r)$ .

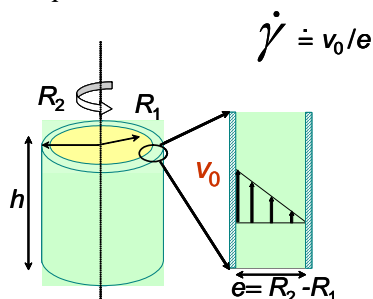
$$v_{r\theta}(r) = \frac{rA}{2\eta} \left( \frac{-1}{r^2} + \frac{1}{R_2^2} \right) \quad (3)$$

$$\Omega = \frac{A}{2\eta} \left( \frac{-1}{R_1^2} + \frac{1}{R_2^2} \right) \quad (4) \quad \langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Omega \quad (6)$$

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{A}{\eta r^2} \quad (5)$$

Comme précédemment le taux de cisaillement varie dans le Couette et la moyenne du taux de cisaillement est définie comme la demi-somme des deux taux de cisaillement au rotor et au stator. La viscosité du fluide est définie comme le rapport entre  $\langle \sigma \rangle$  et  $\langle \dot{\gamma} \rangle$ .

$\Gamma$  imposé,  $\Omega$  mesurée



**Figure 1 :** Schéma de principe d'une cellule de Couette.  $R_1$  est le rayon intérieur de la cellule de Couette,  $R_2$  est le rayon extérieur de la cellule,  $e$  est l'entrefer du Couette,  $V_0$  est la vitesse linéaire de rotation du cylindre intérieur,  $\Omega$  est la vitesse de rotation de l'axe et  $\Gamma$  est le couple appliqué sur l'axe.

Cette définition correspond exactement à la viscosité du fluide dans un cas newtonien et à une viscosité équivalente dans les cas des fluides complexes.

Pour conclure cette section, notons que dans une cellule de couette le taux de variation de la contrainte dans l'échantillon est égal à  $\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{2e}{R_1}$ . Ainsi, pour une cellule de Couette de rayon

interne 25 millimètres, un entrefer de 1mm provoque une variation relative de la contrainte de 8%, un entrefer de 2.5 mm de 20% et un entrefer de 5mm de 40%. Dans la suite, nous allons nous inspirer de ces considérations pour définir un protocole expérimental qui nous permettra de mesurer la courbe d'écoulement d'un fluide complexe.

## II/ Principe de la puce rhéomètre

Les puces micro-fluidiques permettent de déplacer des fluides dans des canaux. Il peut donc sembler naturel d'utiliser ces écoulements pour caractériser les propriétés rhéologiques d'un fluide.

Toutefois, un obstacle de taille s'offre à nous. En effet, les écoulements dans les micro-canaux font appel à des différences de pression ou à des débits. Il faut traduire ces variables en taux de cisaillement et contrainte appliquée. Pour cela, une première voie peut consister en la mesure des courbes de débit en fonction de la surpression appliquée. Le débit est fixé par l'utilisation de seringues et le gradient de pression est mesuré à l'aide d'un capteur. Lorsque ces courbes sont obtenues, on peut présumer un type de comportement rhéologique pour le fluide à étudier (type loi de puissance, fluide à seuil)[1] et de réaliser des simulations numériques en résolvant les équations de Navier Stokes pour trouver les champs de vitesse, calculer les débits pour des surpressions données et comparer enfin avec les valeurs mesurées de façon à trouver les meilleures lois de comportement. Cette démarche nécessite une instrumentation de la puce pour mesurer le gradient de pression ou le débit et un travail de modélisation important nécessitant une présupposition du modèle rhéologique. Nous avons préféré trouver une autre voie. Nous avons choisi d'étudier des écoulements particuliers de la micro-fluidique : les écoulements parallèles [4] (cf Figure 2). Lorsque deux fluides miscibles ou immiscibles (fluide 1 et fluide 2) débouchent des deux bras amont d'une géométrie en T, ils s'écoulent pour une certaine gamme de débit de façon parallèle dans la branche aval du T.

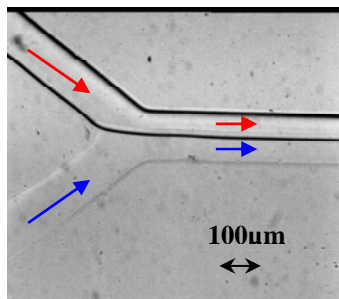


Figure 2 : Exemple d'écoulement parallèle dans une géométrie en Y avec un système de micelles géantes et de l'huile de silicone.

Ces écoulements vont nous permettre d'atteindre deux buts. Nous allons pouvoir par une simple mesure optique réaliser une mesure de la viscosité. Ainsi, il ne sera pas nécessaire d'instrumenter à outrance la puce, car la mesure se fera simplement par une image de microscopie optique. Deuxièmement, nous allons pouvoir sélectionner une gamme de cisaillement appliqué en confinant le fluide à étudier. Dans la suite nous allons expliciter ces deux points.

Le paragraphe suivant présente le principe de la puce micro rhéomètre que nous avons développée. Nous allons tout d'abord nous concentrer sur le cas de deux fluides newtoniens. Notre approche se base sur des principes déjà utilisés par Galambos et collaborateurs [5] et par Groisman et collaborateurs [6]. L'originalité de notre travail réside dans l'utilisation de fluide non miscibles et dans la définition d'un protocole qui permet de définir un taux de cisaillement. Notons que ce point est fondamental car il permet de transformer un viscosimètre en un rhéomètre et donc d'étudier ainsi des fluides complexes.

### II/1 Principe de la mesure de viscosité

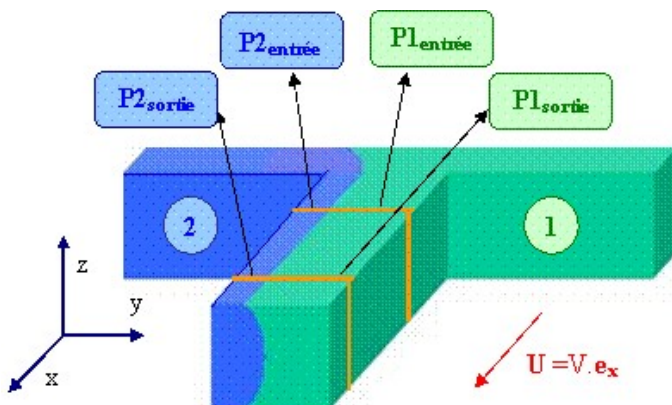


Figure 3 : Schéma de l'écoulement parallèle entre deux fluides immiscibles après une jonction en T.

Lorsque un écoulement parallèle existe, le champ de vitesse n'a de composantes que selon l'axe du canal  $\vec{v}_i = u_i(x, y, z)\vec{e}_x$  (figure 3). L'indice  $i$  prend les valeurs 1 et 2.  $i=1$  désigne le fluide 1,  $i=2$  désigne le fluide 2. De plus dans la zone considérée, l'interface entre les deux fluides a une forme constante selon  $x$ .

$$\frac{\partial u}{\partial x}(x, y, z) = 0 \quad (7)$$

$$\frac{\partial P_i(x, y, z)}{\partial x} = \eta_i \left( \frac{\partial^2 u(y, z)}{\partial^2 y} + \frac{\partial^2 u(y, z)}{\partial^2 z} \right) \quad \frac{\partial P_i(x, y, z)}{\partial y} = 0 \quad \frac{\partial P_i(x, y, z)}{\partial z} = 0 \quad (8)$$

$$\vec{v} = u(y, z)\vec{e}_x \quad P_i(x, y, z) = (P_{i \text{ sortie}} * x + P_{i \text{ entrée}} * (L - x)) / L \quad (9)$$

L'incompressibilité du fluide (7) et les équations de Navier Stokes (8) entraînent que la pression dans le fluide ne dépend que de la variable  $x$  et que le gradient de pression est constant dans un fluide [7]. La continuité des contraintes normales à l'interface impose que le gradient de pression est le même dans les deux fluides. En effet, à une distance  $x$  de l'entrée du canal le saut de pression est donné par  $P_1(x) = P_2(x) + \gamma / R$  car on suppose que la forme de l'interface est invariante selon  $x$ . Les conditions aux limites imposent que la vitesse soit nulle à la paroi et que les contraintes tangentielles soient continues à l'interface. Connaissant la viscosité des deux fluides, le gradient de pression dans la zone invariante selon  $x$  et la position de l'interface il est possible de calculer, grâce à ces équations, les débits des deux fluides.  $Q_i = \oint u_i(y, z) dy dz$  (10)

Inversement, la connaissance des débits, de la viscosité d'un des fluides permet de calculer le gradient de pression et la viscosité de l'autre fluide. C'est ce principe que nous allons utiliser pour mesurer la viscosité d'un fluide. Expérimentalement, nous allons fixer des débits pour obtenir des écoulements parallèles. Nous allons repérer optiquement la position de l'interface et nous allons à travers ce modèle et un programme de simulation numérique calculer la viscosité du fluide à étudier. Ainsi l'utilisation d'un écoulement parallèle et d'un fluide étalon newtonien de viscosité connue permet d'éviter l'instrumentation externe de la puce microfluidique. Le fluide étalon pourra être soit de l'eau, soit un mélange eau glycérol, soit des huiles silicones ou fluorées. Ce fluide pourra être soit un fluide miscible avec le fluide à étudier soit immiscible. Dans le premier cas, la mesure de la position de l'interface devra se réaliser avant que les fluides ne soient mélangés par diffusion. L'utilisation de débit important permet de retarder ce phénomène.

## II/2 Implémentation numérique et résultats numériques

Pour mesurer la viscosité du fluide inconnu, il faut pouvoir calculer le champ de vitesse et le débit des deux fluides si l'on connaît  $\frac{\Delta P}{L}$ , la position de l'interface dans les canaux et les viscosités respectives des deux fluides  $\eta_1$  et  $\eta_2$ . Le système que nous avons à résoudre est donc:

$$\eta_i \left( \frac{\partial^2 u_i}{\partial^2 y} + \frac{\partial^2 u_i}{\partial^2 z} \right) = \frac{\Delta P}{L} \quad (11) \quad \eta_1 \frac{\partial u_1}{\partial n} = -\eta_2 \frac{\partial u_2}{\partial n} \quad (12)$$

dans le domaine  $\Omega_i$  occupé par le fluide  $i$ . Le gradient de pression  $\frac{\Delta P}{L}$  est une constante sur tout le domaine  $\Omega = \Omega_1 \cup \Omega_2$ . Sur le bord du domaine, la vitesse est nulle. Sur l'interface, la condition de continuité de la vitesse s'écrit  $u_1 = u_2$  tandis que la condition de continuité du tenseur des contraintes devient (12) en négligeant la viscosité de surface de la monocouche.  $n$  désigne la normale à l'interface orientée du fluide 1 vers le fluide 2. Afin de calculer numériquement la

solution, nous introduisons une fonction  $u$  égale à  $u_i$  sur  $\Omega_i$  et une fonction  $\eta$  égale à  $\eta_i$  sur  $\Omega_i$ . Les équations vérifiées par les fonctions  $u_i$  ainsi que les conditions de transmission à l'interface impliquent que  $u$  vérifie dans le domaine entier  $\Omega$  : 
$$\nabla \cdot (\eta \nabla u) = \frac{\Delta P}{L} \quad (13)$$

La vitesse  $u$  est alors nulle sur le bord. L'interface a disparu de cette formulation. En particulier, cela permet de traiter des interfaces courbes. Cette équation est discrétisée sur un maillage cartésien régulier grâce à une méthode de volume fini assurant la continuité des flux à l'interface [8].

La méthode de calcul est capable de déterminer le champ de vitesse et donc le débit pour un rapport de viscosité donné. Or nous ne connaissons a priori que le rapport de débit, la position de l'interface et une des viscosités. Pour calculer l'autre viscosité nous la fixons arbitrairement puis calculons le rapport de débit correspondant. Pour converger vers le bon rapport de viscosité nous cherchons à annuler  $(Q_1/Q_2 - (Q_1/Q_2)_{\text{réel}})/(Q_1/Q_2)$  par dichotomie car la fonction  $\eta_1/\eta_2 \rightarrow Q_1/Q_2$  est monotone sur le domaine d'étude. Ceci est supposé atteint lorsque le rapport  $(Q_1/Q_2 - (Q_1/Q_2)_{\text{réel}})/(Q_1/Q_2)$  est inférieur à  $10^{-4}$ . Connaissant la viscosité du fluide de référence nous déduisons la viscosité du fluide d'étude.

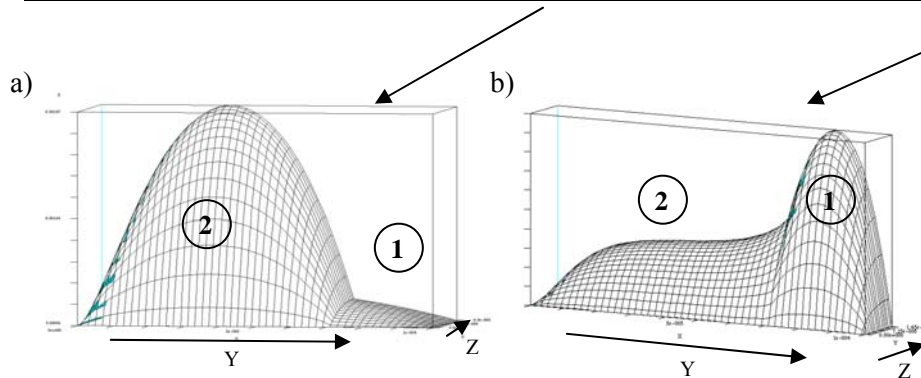
### II/3 Principe de la définition du taux de cisaillement

Le principe énoncé plus haut permet de mesurer la viscosité d'un fluide newtonien connaissant celle d'un fluide étalon. Il faut maintenant préciser comment on définit le cisaillement appliqué et la viscosité dans le cadre d'un fluide non newtonien. Suivant la démarche utilisée par les rhéomètres classique nous allons associer au fluide non newtonien la viscosité qu'aurait un fluide newtonien dans les mêmes conditions opératoires (débits, viscosité du fluide étalon et position de l'interface identique). Ceci permet de définir la viscosité. De même par analogie avec les rhéomètres classiques, nous allons définir le cisaillement appliqué sur le fluide non newtonien en moyennant le taux de cisaillement que ressentirait un fluide newtonien dans les mêmes conditions expérimentales. Toutefois la particularité des écoulements dans les micro canaux impose la

définition de deux taux de cisaillement moyen  $\langle \dot{\gamma}_y \rangle = \oint_{\Omega_i} \frac{\partial u}{\partial y} dy dz / \Omega_i$  et  $\langle \dot{\gamma}_z \rangle = \oint_{\Omega_i} \frac{\partial u}{\partial z} dy dz / \Omega_i$ .

De façon à ne considérer qu'un seul taux de cisaillement et à nous ramener à un écoulement simple, nous allons étudier uniquement les écoulements où le fluide est confiné dans une fine tranche. Ceci permet de se ramener à un écoulement type cellule de Couette où le cisaillement est principalement porté selon l'axe  $y$ . En choisissant ensuite des canaux plus hauts que larges et en sélectionnant des fluides étalons moins visqueux que le fluide à étudier il est alors possible de réduire de façon importante la gamme de cisaillement sur laquelle est sollicité le fluide. La table 1 et la figure 4 confirment quantitativement cette analyse. Les résultats présentés sont obtenus pour une largeur de canal de 100 microns. Nos courbes d'écoulement porteront la viscosité du fluide newtonien équivalent en fonction du taux de cisaillement moyen selon l'axe  $y$  ressenti par le fluide newtonien équivalent. Une barre d'erreur représentant la déviation standard du taux de cisaillement sera aussi portée sur la courbe. Typiquement, nous travaillerons dans des géométries où le rapport  $\langle \dot{\gamma}_z \rangle / \langle \dot{\gamma}_y \rangle$  sera inférieur à 0.5 et où  $\Delta \dot{\gamma}_y / \langle \dot{\gamma}_y \rangle$  sera inférieur à 40%. Ces géométries seront donc comparables à des cellules de Couette de rapport d'aspect  $e/R = 0.2$  où  $e$  est la taille de l'entrefer et  $R$  le rayon interne du Couette. Dans la suite de ce travail, nous allons appliquer ce principe pour construire une puce et mesurer la courbe d'écoulement de différents fluides complexes.

$\eta_1$ Pa.s	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
$\eta_2$ Pa.s	0,001	0.001	0.001	0,001	0.01	0.1	0.001	0.001
$\frac{\Delta \dot{\gamma}_y}{\langle \dot{\gamma}_y \rangle}$	38.19%	40.9 %	45.1%	53%	38.75%	66%	30.91%	19.8%
$\frac{\langle \dot{\gamma}_z \rangle}{\langle \dot{\gamma}_y \rangle}$	0.27	0.43	0.76	1.145	0.27	0.25	0.115	0.031
Interface en $\mu\text{m}$	20	30	50	70	20	20	20	20
Hauteur du canal en $\mu\text{m}$	100	100	100	100	10	100	200	500



**Figure 4**  
 Profil de vitesse dans un canal 100x100  $\mu\text{m}$ . a) Cas favorable pour définir le cisaillement du fluide ① b) Exemple de cas défavorable.

### III/ Section expérimentale

#### III/1 Dispositif expérimental

Les microcanaux sont fabriqués selon la technique développée par Whitesides à Harvard [9]. Une résine photosensible (MicroChem SU8 Resists) est déposée à l'aide d'une tournette sur un wafer de silicium (Siegert Consulting). Le film négatif des canaux, fabriqué par CAD/ART Services, Inc. à partir de dessin CleWin, est apposé sur le wafer du silicium, puis l'ensemble est irradié sous une lampe UV. Les parties exposées à la lumière réticulent et s'ancrent au substrat de silicium. Le polymère non réticulé est retiré en le solubilisant dans du propylène glycol méthyl ether acetate (Sigma-Aldrich). Le wafer avec les canaux en relief constitue le moule de notre dispositif. Du poly(diméthylsiloxane) PDMS avec son durcisseur (Sylgard 184, Dow Corning) est versé sur le moule puis est réticulé à 65°C pendant une heure. Une fois réticulé, le PDMS qui est retiré du moule possède l'empreinte des canaux en creux. Les canaux sont ensuite fermés en collant le morceau de PDMS à une plaque de verre (Marienfeld, 76x52 mm modèle 1520). Le collage s'effectue par liaison chimique en créant des radicaux sur les surfaces de verre et de PDMS à mettre en contact grâce à un UV-Cleaner Jelight [10]. Les canaux sont ensuite laissés une journée à 65°C afin de finir et de renforcer le collage.

#### III/2 Systèmes étudiés

Les solutions de micelles géantes sont préparées à partir de cétypyridinium chloride CpCl (Merck), de salicylate de sodium NaSal (Merck) et de chlorure de sodium NaCl (Merck). Un mélange de NaSal et de CpCl vérifiant  $[\text{NaSal}] = 0.5 [\text{CpCl}]$  est dissous à la concentration souhaitée, ici exprimée en pourcentage massique, dans une solution de NaCl à 0.5M. Les solutions préparées sont du CpCl-NaSal=6% et du CpCl-NaSal=8%. Les autres fluides utilisés dans nos expériences sont de l'hexadécane (Prolabo), de l'huile de silicone Rhodorsil 20cP et 300cP, du glycérol (Prolabo) et de l'eau avec du sodium dodécyle sulfate SDS (Merck) à la cmc (2.34g/L). Avant leur utilisation tous ces fluides sont filtrés à 0.45  $\mu\text{m}$ .

### III/3 Protocole expérimental

Dans nos expériences nous travaillons à débit imposé. Pour cela nous utilisons des pushes seringues Harvard Apparatus PHD 2000. Le fluide de référence et le fluide à étudier sont introduits dans chaque branche du T ou du Y via un tube en polyéthylène que l'on connecte sur la puce par un trou d'accès de diamètre légèrement inférieur à celui du tube. L'élasticité et la souplesse du PDMS assurent l'étanchéité de la connexion.

L'observation des écoulements à l'intérieur de la puce se fait à l'aide d'un microscope inversé Olympus CKX 41. Les images sont enregistrées avec une caméra Hamamatsu 12 bit Orca1 C4742-95. Une fois que l'écoulement parallèle est établi à l'intérieur du canal il est possible d'ajuster la position de l'interface en jouant sur le débit des deux fluides (voir figure 5). Ainsi, il est possible de se positionner dans la situation optimum d'un confinement fin et haut nécessaire à la bonne définition de la contrainte et du taux de cisaillement.

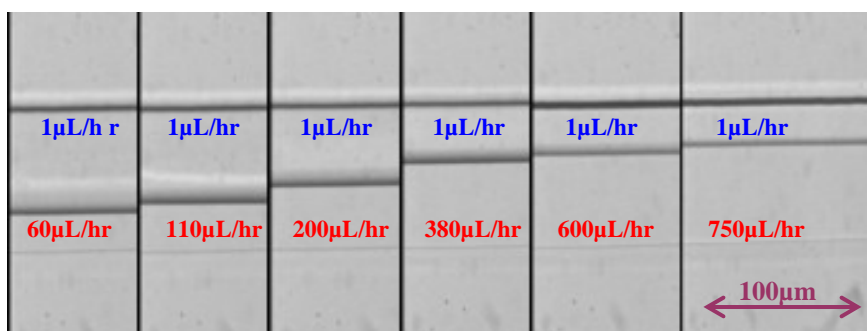


Figure 5: Evolution de la position de l'interface avec le débit. Exemple avec un coflow entre du CpCl-NaSal 6% (en haut) et de l'huile silicone 20cP (en bas). Le débit du CpCl-NaSal est fixé à 1µL/hr, celui de l'huile silicone augmente de gauche à droite.

## IV/ Résultats

### IV/1 Cas de fluides newtoniens

Dans le cas de deux fluides miscibles, l'écoulement parallèle de deux fluides existe pour toutes les gammes de débits imposés. Les fluides étant miscibles, il y a une interdiffusion des deux fluides au niveau de l'interface, ceci se traduisant par un cône de diffusion dans lequel les fluides se mélangent. La formation de ce cône est gênante, car elle rend plus difficile la détection optique de l'interface. Un des moyens de s'affranchir de ce problème de détection est d'utiliser des débits plus élevés. Ainsi, le cône de diffusion est advecté plus loin dans le canal et la zone dans laquelle l'interface est mesurable est agrandi. Nous avons réalisé cette expérience avec du glycérol et de l'eau à 25°C puis tracé la courbe de contrainte en fonction du cisaillement (figure 6 a)). Nous retrouvons bien le comportement newtonien du glycérol à savoir l'évolution linéaire de la contrainte avec le cisaillement. Le coefficient directeur de cette droite nous donne directement la viscosité. Nous trouvons une viscosité de 877 cP pour une valeur de 890 cP donnée par le HandBook, soit moins de 2% d'erreur. Notons que le bon accord entre nos données et les résultats des tables montrent que l'hypothèse de non glissement à la paroi est justifiée. En effet, des expériences de profils de vitesse montrent que la longueur de glissement de l'eau sur des surfaces hydrophobes est inférieure à 1 micron [11]. Cette longueur reste faible devant la taille du canal et ne peut avoir qu'une influence inférieure à 1% d'après nos simulations.

Dans le cas de deux fluides immiscibles, l'écoulement parallèle de deux fluides n'existe pas pour toutes les gammes de débits, il existe également un régime dans lequel on est susceptible de former des gouttes [4]. De nombreux paramètres comme le mouillage sur les parois, les tensions de surface, la viscosité ou encore la géométrie d'entrée influencent ces zones de régime goutte ou écoulement parallèle. Nous avons remarqué qu'un moyen de favoriser la situation de co-écoulement est d'abaisser la tension de surface entre les deux fluides. Ainsi, pour faciliter le co

écoulement de l'eau avec l'hexadécane nous avons ajouté du SDS dans de l'eau à la cmc. A cette concentration là, le SDS ne modifie pratiquement pas les propriétés rhéologiques de l'eau.

En faisant varier les débits et en mesurant la position de l'interface nous avons tracé la courbe de contrainte en fonction du cisaillement pour un co-écoulement d'eau SDS et d'hexadécane (figure 6 b)). Nous trouvons une viscosité de 2.1 cP pour l'hexadécane à 25°C et, comme dans le cas du glycérol, nous retrouvons bien le comportement newtonien de l'hexadécane. Cette valeur est en excellent accord avec les données de la littérature 2.2 à 2.3 cP [12].

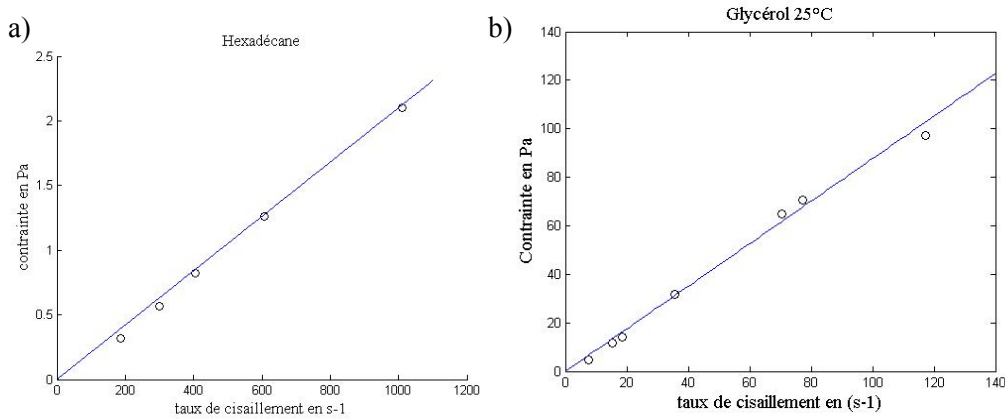


Figure 6 :  
Courbe d'écoulement  
a) de l'hexadécane et  
b) du glycérol à 25°C.

#### IV/ Cas des fluides rhéofluidifiants : CpCl-NaSal

Afin de valider notre technique de mesure dans les microcanaux, nous avons cherché à mesurer la courbe d'écoulement d'un système de micelles géantes puis nous avons comparé nos résultats avec ceux obtenus par un rhéomètre classique. Les micelles géantes ont un comportement rhéofluidifiant, leur viscosité diminue avec le cisaillement. Notons que pour ce système, il semble raisonnable de négliger les phénomènes de glissement. Des mesures locales de champ de vitesse ont montré que le système CpCl-NaSal ne glissait pas sur des parois de Plexiglass [13].

Pour réaliser nos écoulements nous avons utilisé de l'huile de silicone à 20 cP et 300 cP comme fluides de référence. Les expériences ont été réalisées à la température ambiante de 25°C. Les deux fluides que nous avons étudiés sont du CpCl-NaSal à 6% et 8%. Ces mêmes solutions ont été ensuite mesurées sur un rhéomètre cône-plan TA Instrument AR 1000 N. Le cône utilisé avait un diamètre de 4 cm et un angle de 2°, l'ensemble de la manipulation était thermostaté à 25°C.

Les courbes d'écoulements obtenues sont représentées sur la figure 7. Le comportement rhéofluidifiant des micelles géantes de CpCl-NaSal apparaît de manière évidente sur les deux courbes. De plus la concordance avec les résultats trouvés par un rhéomètre classique est bonne.

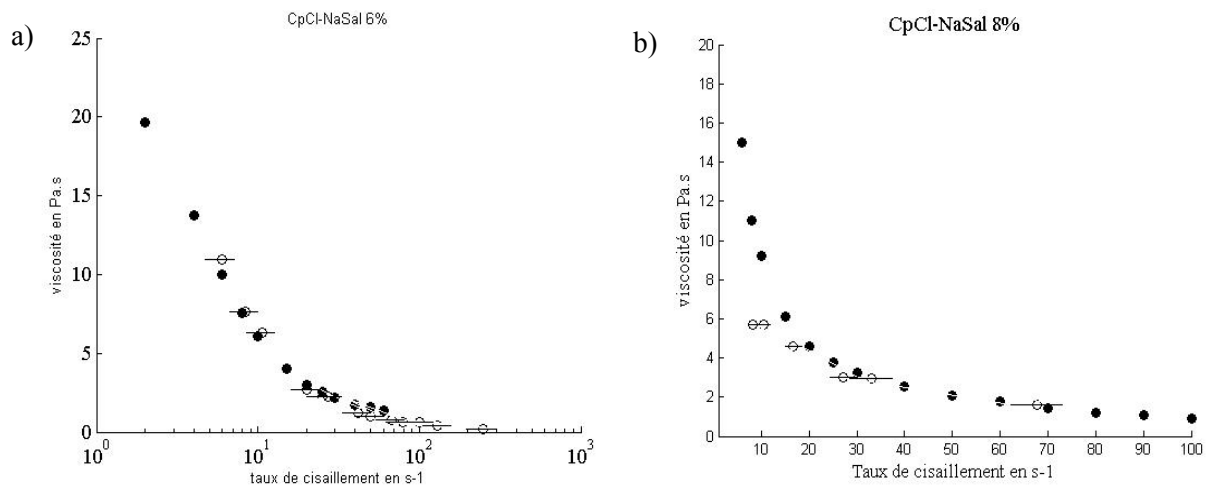


Figure 7 :

Comparaison des résultats obtenus par un rhéomètre (symboles pleins) et un microrhéomètre (symboles vides) pour des solutions de micelles géantes a) CpCl-NaSal 6% et b) CpCl-NaSal 8%.

## Conclusion

Dans ce travail, nous avons mis au point une puce micro fluidique rhéomètre.

Nous avons défini un protocole expérimental qui permet à partir d'une simple mesure optique de mesurer la courbe d'écoulement d'un fluide complexe. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec des mesures réalisées sur des rhéomètres classiques. Les valeurs des viscosités mesurables varient entre 2cp et 10000 cp. Les perspectives de ce travail concernent l'extension des gammes de cisaillement accessibles, notamment vers les bas taux de cisaillement. Ceci sera atteint en travaillant avec des canaux plus larges et donc plus hauts. Ces canaux seront réalisés en collant thermiquement des lames de verres. Un des problèmes important des mesures rhéologiques concerne les phénomènes de glissement à la paroi. Dans notre étude ces problèmes ne nous ont pas gênés. Nous allons continuer nos mesures sur des émulsions qui présentent généralement de tels phénomènes et nous essaierons de proposer une correction type Money Couette [1].

Comme nous l'avons dit précédemment la rhéologie consiste en une mesure globale et moyennée sur la géométrie de l'écoulement. Nous souhaitons obtenir des informations plus locales. Pour cela, nous allonsensemencer le fluide étalon et le fluide à étudier avec des latex et mesurer, grâce à la trajectoire de ces latex, les profils de vitesse. A partir de ces données, il est possible de calculer le cisaillement local à l'interface (cette technique servira aussi à mesurer les phénomènes de glissement). La viscosité du fluide à étudier sera déduite en appliquant la continuité du tenseur des contraintes tangentielles à l'interface. La mesure obtenue sera ainsi locale et ne sera plus une moyenne sur un écoulement. Nous souhaitons aussi travailler sur les conditions d'existence des écoulements parallèles. Ces écoulements sont favorisés par la forme des géométries de mise en contact des deux fluides.

## Références :

- [1] R.G. Larson, *The Structure and Rheology of Complex Fluids* Oxford University Press, Oxford, **1999**
- [2] J.-F. Berret, D.C. Roux et G. Porte, *J. Phys. II* **4**, 1261 **1994**
- [3] O. Diat, D. Roux et F. Nallet, *J. Phys. II* **3**, 1427 **1993**
- [4] R. Dreyfus, P. Tabeling et H. Willaime, *Phys. Rev. Lett* Number 14 Vol **90**, p144505-1, **2003**
- [5] P. Galambos et F. Forster DSC-Vol 66, *Micro-Electro-Mechanical System (MEMS)*\_1998 ASME 1998 presented at the 1998 ASME Intl. Mech. Eng. Cong&Exp;, **Nov.15-20 , 1998** Anaheim , CA
- [6] A. Groisman, M. Enzelberg et S. Quake *Science* Vol 300 9 **May 2003**
- [7] E. Guyon, J.-P. Hulin, et L. Petit, *Hydrodynamique Physique* Interéditions/éditions du CNRS, Paris, **1994**.
- [8] R. Eymard, T. Gallouët et R. Herbin. *Finite Volume Methods Handbook of Numerical Analysis*, Vol. VII, p. 713-1020. Editors: P.G. Ciarlet and J.L. Lions, **2000**.
- [9] Duffy D. C., McDonald J. C., Schueller O. J. A. et Whitesides G.M. *Anal. Chem.*, 70, 4974-4984, **1998**.
- [10] C. Harrison, Joao T Cabral, C. M Stafford, A. Karim et E. J Amis *J. Micromech. Microeng.*, **14**, 153–158, **2004**.
- [11] Derek C; Tretheway et Carl D. Meinhart *Physics of Fluids* Vol **14**, Number 3, p 1070-6631, **March 2002**.
- [12] M. Fermeglia et G. Torriano, *J. Chem. Eng. Data*, **44**, 965-969, 1999.
- [13] J.-B. Salmon, A. Colin, S. Manneville et F. Molino, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 228303, **2003**.