

La microfluidique digitale pour l'expérimentation haut-débit

Nous détaillerons dans cette partie les différentes briques qui peuvent constituer un système microfluidique haut-débit en gouttes. Nous ne présenterons pas ici le mélange car il s'agit de l'étape que nous avons choisi de développer (voir Chapitre V). Nous finirons par deux exemples de systèmes intégrant plusieurs de ces étapes.

I.1.1 Génération de gouttes en microfluidique

Le point de départ de la microfluidique digitale est la formation des gouttes constituant des microréacteurs. Une production contrôlée de gouttes est indispensable dans le domaine de l'expérimentation haut-débit pour faciliter leur manipulation et avoir une bonne précision sur leur contenu. Dans cette partie, nous allons présenter les différentes techniques de génération de gouttes.

I.1.1.1 Génération passive de gouttes

La génération de gouttes en microfluidique peut se faire de manière passive par l'introduction de deux fluides immiscibles dans un système microfluidique présentant une géométrie spécifique. La phase à disperser est introduite dans un microcanal où elle rencontre la phase continue. Sous un régime d'écoulement spécifique, un jet de phase dispersée se forme dans la phase continue et des petites perturbations dans l'écoulement vont provoquer des ondulations sinusoïdales au niveau du jet de phase dispersée. Ces ondulations s'amplifient pour finalement casser le jet en gouttes. Ce phénomène, appelé l'instabilité de Rayleigh-Plateau est à l'origine de la formation des gouttes dans les systèmes microfluidiques [17].

La géométrie de la jonction avec les débits et les propriétés physiques des fluides (tension interfaciale et viscosité) déterminent localement les caractéristiques de l'écoulement qui vont contrôler la déformation de l'interface et conduire éventuellement à la formation d'une goutte.

Les nombres adimensionnels sont souvent utilisés lors de l'étude de phénomènes physiques car ils permettent de caractériser l'importance relative des différents effets impactant le phénomène étudié. Parmi tous les nombres adimensionnels, le nombre le plus important pour la formation des gouttes est le nombre capillaire :

$$Ca = \frac{\eta_c u}{\gamma} \quad (1)$$

Avec η_c la viscosité de la phase continue, u sa vitesse et γ la tension interfaciale. Le nombre capillaire compare l'importance relative entre les forces visqueuses et capillaires. Ce nombre varie entre 10^{-3} et 10 pour la plupart des microsystèmes de formation de gouttes [18]. D'autres nombres adimensionnels sont aussi souvent utilisés. Il s'agit de λ et ϕ qui représentent le ratio entre respectivement les viscosités et les débits des phases dispersée et continue.

Le nombre de Reynolds compare l'importance relative entre l'inertie et les forces visqueuses, il est défini de la manière suivante :

$$Re = \frac{\rho u D_H}{\eta} \quad (2)$$

Avec ρ la masse volumique de la phase considérée et D_H le diamètre hydraulique du canal. Ce nombre est classiquement très inférieur à 1 dans les systèmes microfluidiques.

I.1.1.1.1 Géométries de formation de gouttes

Les géométries de type : jonction T, co-courant et flow-focusing sont les trois géométries les plus utilisées en microfluidique pour la production de gouttes. Les tailles des gouttes obtenues sont généralement caractérisées par leur coefficient de variation CV qui est défini par le rapport de l'écart-type sur la moyenne des diamètres des gouttes de la population.

I.1.1.1.1.1 Jonction T

La jonction T (Figure 1) a été employée pour la première fois en 2001 par Thorsen *et al.* [19] pour produire des gouttes d'eau dans de l'huile. Pour cela, ces deux fluides immiscibles sont injectés dans deux canaux perpendiculaires. La production de gouttes se fait là où les deux canaux se rencontrent. Cette géométrie est très utilisée car elle permet facilement de former des gouttes monodisperses (CV < 2 %). Des variantes de cette géométrie existent où l'on fait varier l'angle entre les deux canaux d'arrivée des fluides. Il est aussi possible de faire arriver les fluides face à face.

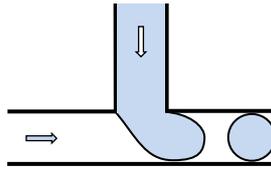


Figure 1 Géométrie jonction T

1.1.1.1.2 Co-courant

Comme son nom l'indique, dans la géométrie co-courant (Figure 2), les phases dispersée et continue constituent des courants parallèles au moment de leur rencontre dans le canal. Cette géométrie a été employée pour la première fois par Umbanhowar *et al.* [20]. Les géométries co-courant peuvent être soit planes (microsystèmes fabriqués par photolithographie), soit tridimensionnelles coaxiales (capillaires imbriqués), la géométrie coaxiale présentant l'avantage de limiter les problèmes de mouillage grâce à l'absence de ligne triple. Les gouttes formées en régime d'écoulement dripping présentent généralement un coefficient de variation en tailles inférieur à 3 %.

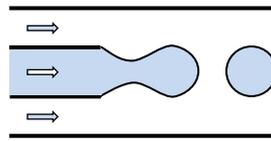


Figure 2 Géométrie co-courant

1.1.1.1.3 Flow-focusing

Pour la géométrie flow-focusing (Figure 3), les gouttes sont formées au niveau d'une jonction en croix ou similaire. La phase dispersée arrive par la branche de gauche et la phase continue par les branches verticales. La branche droite présente généralement une restriction. Anna *et al.* [21] furent les premiers à intégrer cette géométrie dans un système microfluidique. Cette géométrie permet de former des gouttes monodisperses présentant un coefficient de variation inférieur à 5 %.

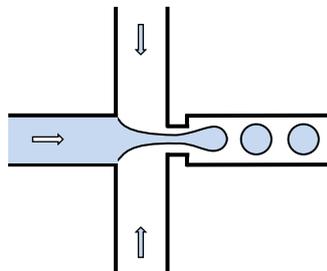


Figure 3 Géométrie flow-focusing

I.1.1.1.2 Régimes d'écoulement

Lors de la formation passive de gouttes, l'écoulement est contrôlé soit par des pousse-seringues soit par des sources de pression. Différents régimes d'écoulement peuvent alors être observés : squeezing, dripping, jetting, tip-streaming et tip-multi-breaking (Figure 4). Le passage d'un régime à l'autre peut se faire en faisant varier le nombre capillaire. Les 3 premiers régimes ont été observés en jonction-T, co-courant et flow-focusing. Les deux derniers régimes n'ont pas été observés dans des géométries en jonction-T.

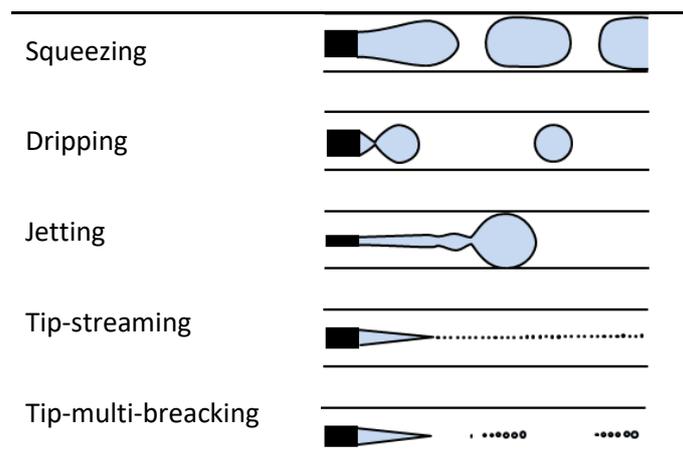


Figure 4 Schémas des différents modes de formation de gouttes en géométrie co-courant

Le régime « squeezing » est principalement contrôlé par le confinement dans les canaux. Généralement, les gouttes formées sous ce régime d'écoulement sont plus larges que la taille du canal et monodisperses. Ce mode apparait dans des jonctions-T pour des nombres capillaires inférieurs à 10^{-2} [22]. La phase dispersée obstrue complètement le canal au moment de la formation de la goutte. La goutte est confinée dans le canal et ressemble plus à un plug qu'à une sphère. Il est intéressant de noter que pour ce régime, le volume de la goutte est proportionnel au rapport des débits des phases dispersée et continue indépendamment de la viscosité de la phase continue [23].

Sous le régime de gouttes dripping, les gouttes sont plus petites que la taille du canal et monodisperses. Contrairement au régime squeezing, les gouttes se forment avant que la phase dispersée n'obstrue le canal. La taille des gouttes est principalement contrôlée par le nombre capillaire. On passe du régime dripping au régime jetting en augmentant le débit de la phase dispersée ou celui de la phase continue. Un jet de phase dispersée se terminant par des gouttes (instabilité de Rayleigh-Plateau) est alors émis. Sous le régime jetting, les gouttes sont polydisperses.

Concernant le régime tip-streaming, la phase dispersée est déformée en forme de cône au bout duquel de très petites gouttes monodisperses se forment. En tip-multi-breaking, des gouttes sont formées suivant des séquences périodiques au bout d'un cône de phase dispersée. Contrairement au cas du régime tip-streaming, ici le cône est instable.

1.1.1.2 Génération active de gouttes

Les systèmes générateurs de gouttes passifs trouvent spontanément leur point de fonctionnement (taille de gouttes et fréquence de formation) selon les conditions d'écoulement (géométrie, débit, pression) et les propriétés des fluides employés. Cependant, la production de gouttes peut aussi se faire de manière active grâce à l'introduction d'une énergie supplémentaire qui amène le contrôle de la formation des gouttes à un niveau supérieur. Cette énergie supplémentaire peut être de nature électrique, magnétique, acoustique, optique, thermique ou encore mécanique [24]. Elle permet soit d'introduire une force supplémentaire, soit de modifier les paramètres intrinsèques des fluides et par exemple de jouer sur l'équilibre entre forces visqueuses et capillaires. Cette méthode permet d'offrir plus de flexibilité sur le contrôle de la taille des gouttes et de leur fréquence de formation.

1.1.2 Détection de gouttes

Détecter la présence d'une goutte dans une partie spécifique du microsysteme peut se révéler important lorsque l'on souhaite suivre des phénomènes dépendant du temps ou qui nécessitent une manipulation ultérieure de la goutte comme le tri. Détecter les gouttes permet surtout de les sélectionner et d'automatiser l'ensemble du système. En plus de détecter leur présence et de donner une indication sur leur taille, il est intéressant de pouvoir analyser leur contenu. Des techniques de spectrométrie de masse [25], spectrométrie Raman [26] ou d'électrophorèse capillaire [27] ont déjà été couplées avec des systèmes microfluidiques. Cependant, les deux techniques principales restent des techniques électriques et optiques.

Ainsi les gouttes peuvent être détectées de manière électrique avec par exemple la présence d'électrodes implantées dans le microsysteme [28]. Si la phase dispersée est aqueuse, elle est souvent plus conductrice que la phase continue composée d'huile. Ainsi lorsqu'une goutte entre en contact avec les deux électrodes, un changement de résistance est enregistré. Cependant, le fait que chaque goutte entre en contact avec les électrodes peut générer de la contamination croisée.

Les techniques optiques détectent la lumière transmise ou émise par les gouttes à différentes longueurs d'onde. Des fibres optiques ont été intégrées à un microsysteme pour détecter les gouttes [29].

Des mesures de fluorescence ont aussi été utilisées pour détecter les gouttes et leur contenu. On peut en particulier citer le système FADS (Fluorescent Activated Droplet Sorting) qui est capable de détecter des cellules dans des gouttes et de les trier à une fréquence pouvant aller jusqu'à 2000 Hz [30]. Cependant cette méthode requiert des équipements encombrants et coûteux comme un faisceau laser et différentes lentilles.

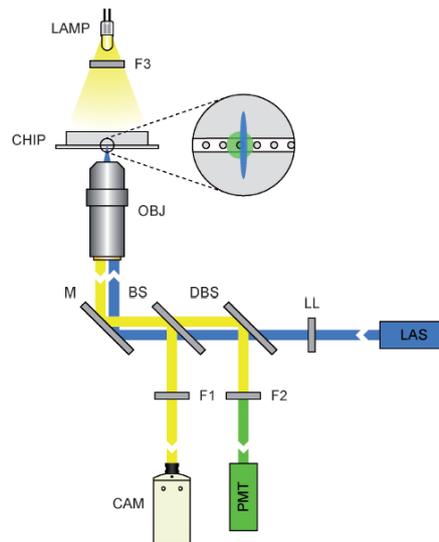


Figure 5 Schéma de principe du dispositif optique du FADS [30]

La méthode la plus simple et répandue est l'intégration d'une caméra rapide CCD à un microscope. Par analyse d'image, il devient alors possible de mesurer leur taille, leur fréquence d'apparition, l'intensité de la lumière diffusée par son contenu... Cependant, une analyse en temps réel nécessite une importante puissance de calcul et implique une limitation des débits.

Jakiela *et al.* [31] ont utilisé une caméra linéaire pour détecter des gouttes dans un canal microfluidique. La caméra linéaire enregistre moins de pixels, 2048 précisément, au lieu de plusieurs mégapixels enregistrés avec des caméras CCD standard, réduisant ainsi la puissance de calcul requise et permettant donc l'augmentation du débit. En analysant l'intensité lumineuse, la caméra linéaire peut détecter les extrémités avant et arrière de la goutte, fournissant ainsi des informations sur la vitesse et le volume des gouttes, ainsi que leur fréquence d'apparition.

I.1.1 Manipulation de gouttes

I.1.1.1 Tri de gouttes

Une fois que les gouttes ont été détectées et leur contenu éventuellement identifié, différentes techniques de tri existent pour pouvoir sélectionner les gouttes d'intérêt et rejeter les autres. Classiquement, la résistance hydraulique de la sortie principale est diminuée pour que les gouttes s'y

dirigent spontanément sans sollicitation extérieure. Ce tri peut se faire de manière passive sur la taille des gouttes par exemple en jouant sur le profil de l'écoulement et les différentes résistances hydrodynamiques des canaux [32]. Ce tri peut aussi se faire de manière active où la mesure d'une propriété de la goutte va déclencher ou non une réaction permettant de diriger une goutte vers un canal microfluidique choisi. La déviation vers un autre canal de sortie des gouttes peut se faire de manière mécanique avec l'intégration de valves au microsystème [33, 34] ou encore grâce à des ondes acoustiques [35].

La technique la plus prometteuse reste la diélectrophorèse. Ahn *et al.* [36] ont été les premiers à proposer cette technique. Les gouttes sont déviées au niveau d'une jonction en Y grâce à la création d'un champ électrique.

Des gouttes contenant des particules magnétiques peuvent aussi être facilement manipulées grâce à un champ magnétique [37]. Il est aussi possible de diriger des gouttes dans une direction donnée en jouant sur l'effet Marangoni grâce à un laser [38].

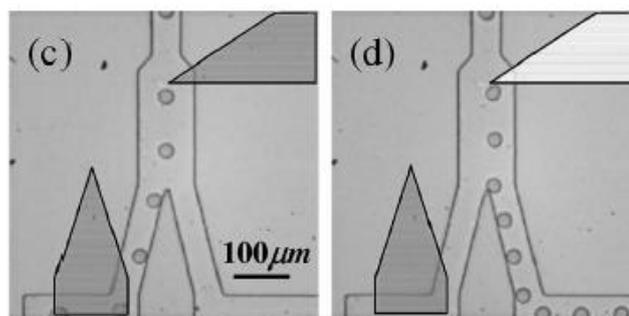


Figure 6 Technique de tri par diélectrophorèse [36]

1.1.1.2 Coalescence de gouttes

Les analyses chimiques ou biologiques nécessitent souvent la coalescence de différents liquides pour achever une réaction. Les réactions dans des gouttes peuvent être utilisées pour un certain nombre d'applications, y compris la formation de particules, la synthèse chimique, des études cinétiques ou pour la synthèse de biomolécules [39]. La microfluidique digitale permet d'obtenir des gouttes isolées qui peuvent être fusionnées pour servir de compartiments dans lesquels des réactions organiques rapides pourraient être étudiées.

Il existe plusieurs facteurs qui affectent la coalescence des gouttes comme les propriétés de mouillage des parois du canal, la géométrie des microcanaux, le nombre capillaire, la présence de tensioactifs, les viscosités des fluides et la vitesse des gouttes mais leur effet n'a pas encore été complètement caractérisé [40].

Le modèle le plus couramment utilisé pour prédire la coalescence des gouttes est le modèle du drainage du film de phase continue présent entre deux gouttes à proximité. Ce film les empêche de coalescer pendant une durée proportionnelle à $a_0 \sqrt{\frac{\eta_c}{\gamma u}}$ avec a_0 le rayon des gouttes, η_c la viscosité de la phase continue, γ la tension interfaciale et u la vitesse d'approche de la première goutte vers la deuxième [41]. Dès que le film de liquide est assez fin, les forces intermoléculaires entrent en jeu et rompent l'interface permettant ainsi la coalescence. La plupart du temps, des tensioactifs sont ajoutés à la phase continue. La tension interfaciale est alors réduite, la génération et le transport des gouttes sont facilités, leur stabilité est prolongée et les risques de contamination croisée sont réduits. Ainsi, les gouttes peuvent être utilisées comme microréacteurs individuels. L'inconvénient de l'ajout de tensioactifs est qu'il nuit à la spontanéité de la coalescence des gouttes à cause de deux phénomènes principaux, la répulsion des tensioactifs et l'effet Marangoni. Les tensioactifs présents à l'interface se repoussent, ainsi le film ne s'amincit pas et les gouttes restent stables. De plus, l'effet Marangoni se produit et crée un contre-courant dans le film liquide ralentissant ainsi le drainage du film liquide. Lorsqu'il s'agit tout de même de favoriser la coalescence, différentes techniques ont été mises en place comme l'électrocoalescence [42] où l'interface est soumise à un champ électrique intense ou des méthodes hydrodynamiques passives [43] basées sur le design de géométries de canaux spécifiques qui vont augmenter la vitesse d'approche des deux gouttes ou encore prolonger la durée pendant laquelle elle sont proches l'une de l'autre.

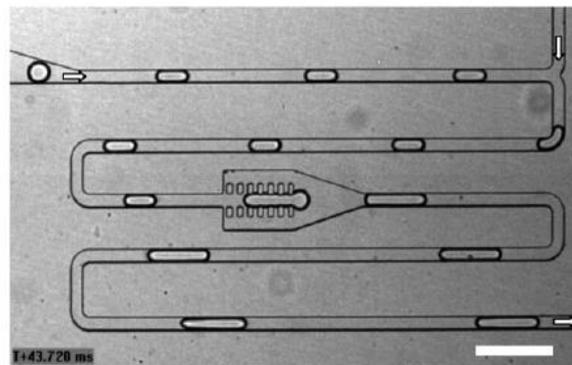


Figure 7 Coalescence de gouttes par voie hydrodynamique passive [43]

1.1.1.3 Fractionnement de gouttes

Les différents composés peuvent être introduits dans une puce grâce à un système robotisé. En raison de la vitesse d'un tel mouvement, les gouttes produites tendent à être de grande taille. Une méthode très prometteuse est la division ou le fractionnement contrôlé des gouttes.

En réduisant le volume des gouttes, il est alors possible de contrôler la concentration de produits chimiques à l'intérieur des gouttes et de produire des panels de gouttes pour des applications de

criblage à haut débit par fractionnements successifs. Le fractionnement des gouttes peut se faire facilement à l'aide d'une simple jonction Y. La symétrie de la jonction peut être modifiée pour ajuster les tailles relatives des gouttelettes filles. Une jonction parfaitement symétrique conduit à la rupture de la goutte en deux gouttes de taille égale [44].

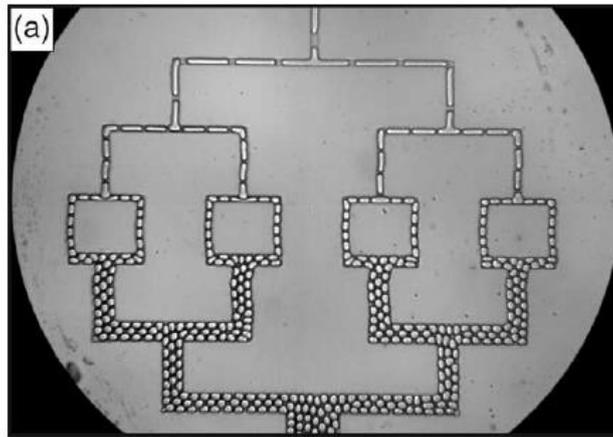


Figure 8 Fractionnement symétrique et successif de gouttes [44]

1.1.1.4 Immobilisation des gouttes

Compte tenu de la nature rapide des applications de criblage à haut débit, il n'est pas facile de suivre une seule goutte et d'observer la réaction qui se produit à l'intérieur. Une approche efficace consiste à piéger une goutte, à l'observer pendant qu'elle est immobile puis à la relâcher pour une éventuelle manipulation ultérieure. Cependant, étant donné que les gouttes d'un volume de l'ordre du picolitre sont très mobiles et non rigides, il est assez difficile de les piéger. Les chercheurs ont développé diverses nouvelles méthodes pour surmonter ce problème. Une méthode est d'inclure dans la géométrie du microcanal des encoches ou encore des puits où la goutte peut venir se coincer [45]. Des systèmes plus récents impliquant des vannes ont aussi été conçus pour l'immobilisation de gouttes [46].

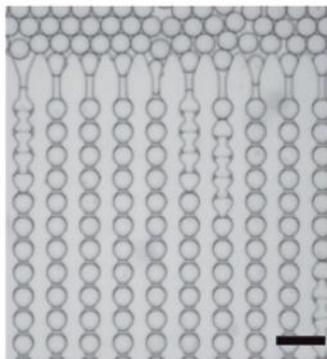


Figure 9 Gouttes coincées dans des micro-emplacements [45]

I.1.2 Exemple de système totalement intégré

Sjostrom *et al.* [47] ont conçu un incubateur microfluidique avec plusieurs zones d'observation pour étudier la cinétique d'action d'une enzyme sur un substrat en présence d'un inhibiteur. Les enzymes sont initialement mélangées à différentes concentrations d'inhibiteur marqué par fluorescence et des gouttes de ce mélange sont formées dans de l'huile fluorée. Les gouttes sont réinjectées dans une seconde puce où un picoinjecteur couplé à une électrode permet d'injecter dans chaque goutte le substrat aussi marqué par fluorescence accompagné d'une solution tampon. Les gouttes sont ensuite incubées dans un canal possédant différentes zones d'observation correspondant à différents temps d'incubation. La fluorescence des gouttes y est mesurée. Les différentes concentrations en inhibiteur et en substrat peuvent être variées en changeant les rapports de débits des picoinjecteurs. Les données peuvent ensuite être utilisées pour extraire les vitesses de réaction pour différentes combinaisons de concentrations en substrat et en inhibiteur, qui à leur tour sont utilisées pour déterminer les paramètres cinétiques de l'action de l'enzyme sur le substrat en présence d'inhibiteur.

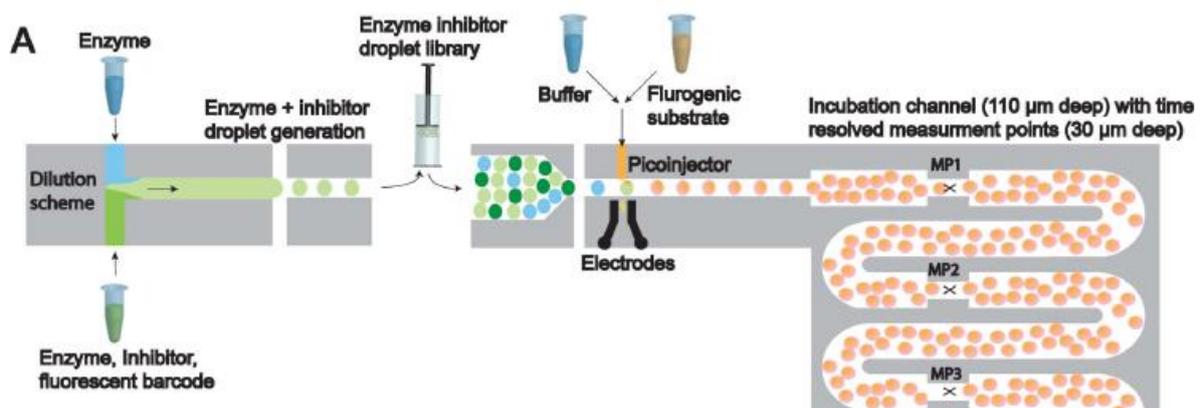


Figure 10 Schéma d'une approche microfluidique en gouttes permettant le suivi cinétique d'une réaction enzymatique [47]

Huang *et al.* [48] ont mis au point une approche microfluidique pour améliorer la production de protéines recombinantes d'une souche de levure. Les souches sont d'abord exposées aux UV pour induire des mutations puis encapsulées dans des gouttes, incubées et réinjectées dans une seconde puce microfluidique. Les souches sécrétant le plus l'enzyme souhaitée sont ensuite sélectionnées par FADS et recueillies pour le séquençage de leur ADN.

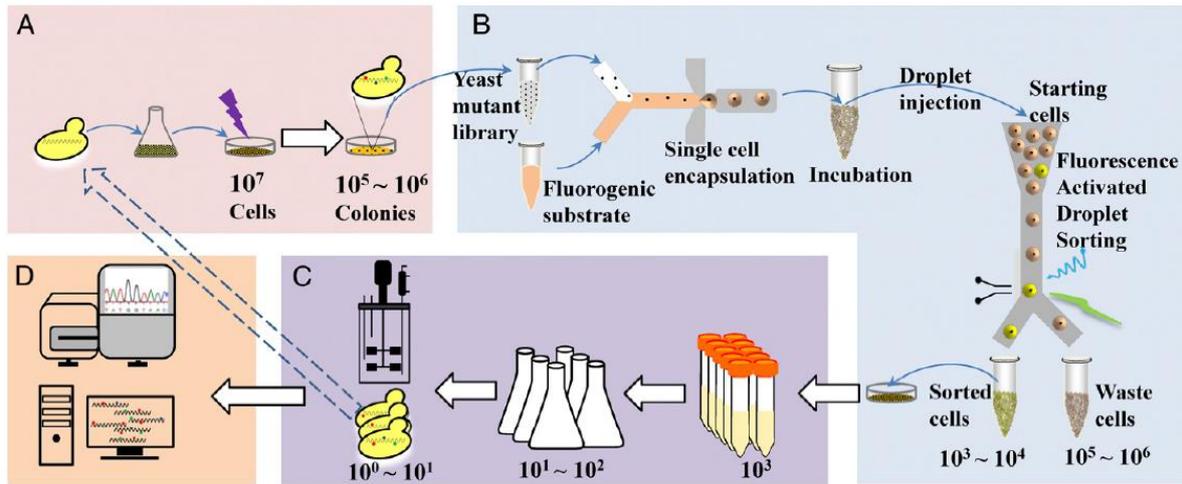


Figure 11 Schéma d'un criblage haut-débit de souches de levures pour leur sécrétion enzymatique améliorée [48]

Comme le montre les deux exemples précédents, des molécules fluorescentes sont souvent utilisées pour détecter une activité biologique ou chimique. L'analyse s'effectue alors grâce à une mesure optique. Cependant, on peut vouloir ouvrir cette mesure à d'autres propriétés en particulier physico-chimiques comme la viscosité. Dans la suite, nous commencerons par introduire les notions générales de rhéologie puis présenterons rapidement les rhéomètres classiques et finirons par la présentation des microviscosimètres répertoriés dans la littérature.

I.2 Rhéologie et mesure de viscosité

La rhéologie a été développée pour décrire les propriétés de matériaux au comportement mal défini et intermédiaire entre celui du solide élastique parfait et celui du fluide newtonien. Le mot rhéologie a été inventé en 1929 par Eugène Cook Bingham et désigne la science de la matière en écoulement [49, 50].

I.2.1 Rhéologie des fluides newtoniens et non newtoniens

I.2.1.1 Définition d'un fluide newtonien

Les mouvements les plus fréquemment mis en œuvre en rhéologie sont les mouvements de cisaillement. Un mouvement de cisaillement est classiquement représenté par le mouvement d'un échantillon entre deux faces planes, l'une au repos, l'autre animée d'un déplacement parallèle à elle-même. Sous l'effet de ce cisaillement, le matériau s'écoule en couches planes, parallèles entre elles, animées de vitesses différentes qui varient continûment entre 0 pour la couche en contact avec la surface fixe et V pour celle en contact avec la surface mobile (Figure 12).

Le taux de cisaillement notée $\dot{\gamma}$ caractérise la variation de vitesse entre ces deux couches limites. Elle est égale au quotient de la vitesse V et de l'épaisseur e de l'échantillon : $\dot{\gamma} = \frac{V}{e}$.

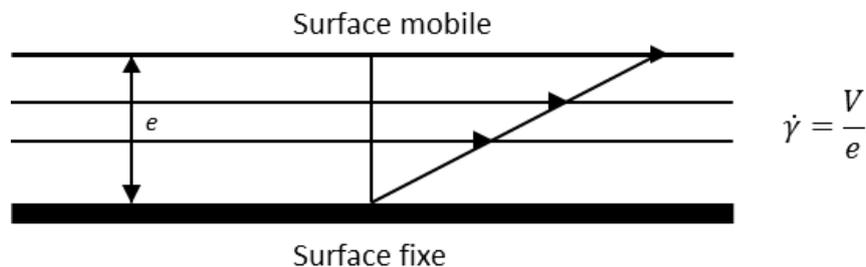


Figure 12 Mouvement de cisaillement entre deux surfaces planes

Les différentes couches se déplaçant les unes par rapport aux autres, des forces de frottement apparaissent entre ces couches et s'exercent tangentiellement à leur surface. Ces forces rapportées à l'unité de surface définissent la contrainte de cisaillement notée σ .

Le rapport de la contrainte au taux de cisaillement est appelé coefficient de viscosité et est classiquement noté η . Pour le cas des liquides newtoniens, il y a proportionnalité entre contrainte et taux de cisaillement ainsi la viscosité est la même quelle que soit le taux de cisaillement et est définie par $\eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}}$.

1.2.1.2 Comportements des fluides non-newtoniens

Contrairement aux fluides newtoniens, la relation de proportionnalité entre contrainte et taux de cisaillement n'est plus vérifiée dans le cas des fluides non-newtoniens et leur viscosité varie avec le taux de cisaillement. De plus, cette viscosité apparente n'est pas seulement fonction des conditions d'écoulement, elle peut aussi dépendre de l'histoire du fluide.

Ainsi, il est possible de classer les fluides non-newtoniens en trois catégories :

- les systèmes pour lesquels la valeur du taux de cisaillement en un point donné du fluide dépend uniquement de la valeur de la contrainte de cisaillement en ce même point c'est-à-dire les fluides purement visqueux, inélastiques, indépendants du temps.
- les systèmes pour lesquels la relation entre vitesse et contrainte de cisaillement dépend aussi de la durée du cisaillement et de l'histoire du fluide c'est-à-dire les fluides thixotropes ou rhéopexes.
- les systèmes qui montrent à la fois un comportement de fluide visqueux et de solide élastique c'est-à-dire les fluides viscoélastiques.

A noter que certains fluides peuvent présenter les caractéristiques de deux voire même des trois catégories précédentes.

I.2.1.2.1 Fluides à comportement indépendant du temps

Les fluides non-newtoniens à comportement indépendant du temps peuvent être classés suivant le profil de leur rhéogramme qui représente l'évolution de la contrainte en fonction de. Ce classement met en évidence trois types de comportements (Figure 13) :

- Le comportement rhéofluidifiant (ou pseudo-plastique) : la viscosité décroît lorsque le taux de cisaillement augmente.
- Le comportement rhéoépaississant (ou dilatant) : le liquide devient plus visqueux lorsque le taux de cisaillement croît.
- Le comportement à seuil de contrainte (ou plastique) : le matériau ne s'écoule qu'au-delà d'une contrainte critique appelée seuil d'écoulement.

De nombreux modèles mathématiques permettant de modéliser le comportement en écoulement des différents fluides pseudo-plastiques et plastiques existent. Ils s'expriment sous la forme $\sigma = f(\dot{\gamma})$ la viscosité étant définie dans tous les cas par $\eta(\dot{\gamma}) = \frac{f(\dot{\gamma})}{\dot{\gamma}}$.

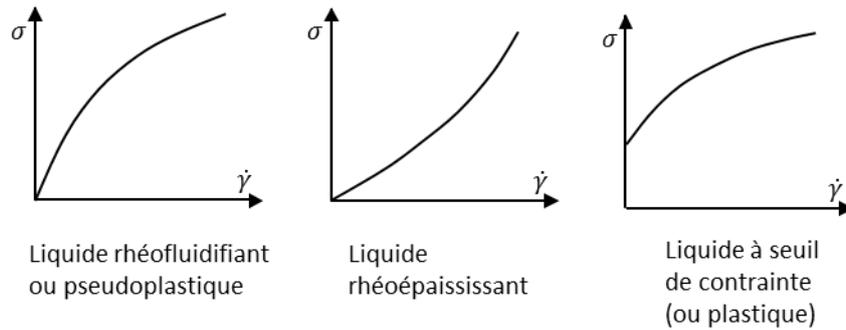


Figure 13 Rhéogramme des différents comportements

Le comportement rhéofluidifiant est le comportement non-newtonien indépendant du temps le plus courant. Dans le cas des solutions de polymères, à faibles taux de cisaillement, la viscosité approche un plateau newtonien pour lequel la viscosité est indépendante du taux de cisaillement, il s'agit de la viscosité à cisaillement nul η_0 . On retrouve un plateau similaire à hauts taux de cisaillement. La viscosité associée est notée η_∞ . Cette valeur est souvent très légèrement supérieure à la viscosité du solvant. Plusieurs modèles mathématiques ont été développés pour modéliser le comportement des fluides rhéofluidifiants, les principaux sont les suivants :

- La loi d'Ostwald ou loi en puissance : souvent l'évolution de la contrainte en fonction du taux de cisaillement présente un comportement linéaire lorsqu'elle est tracée en log-log ainsi il est possible d'écrire la relation suivante :

$$\sigma = m(\dot{\gamma})^n \quad (3)$$

avec $0 < n < 1$ et m l'indice de consistance. Plus la valeur de n est faible, plus le fluide est rhéofluidifiant. Pour la plupart des solutions de polymère, la valeur de n varie entre 0,3 et 0,7, valeur qui varie en fonction de la concentration et de la masse molaire du polymère.

- Modèle de Cross : ce modèle est plus complet que le précédent car il prend en compte l'existence des plateaux newtoniens à faibles et hauts taux de cisaillement. Le modèle est le suivant :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + m(\dot{\gamma})^n} \quad (4)$$

I.2.1.2.2 Les fluides au comportement dépendant du temps

Certains liquides présentent un comportement dépendant de l'histoire passée de l'échantillon. C'est le cas en particulier pour les liquides thixotropes et rhéopexes. Ces liquides possèdent un caractère

respectivement rhéofluidifiant ou rhéoépaississant qui ne se manifeste pas en totalité dès l'application du cisaillement mais de manière différée dans le temps à cause d'une déstructuration de l'échantillon due au cisaillement. En pratique, un tel comportement est observé lorsqu'on réalise des mesures en faisant croître le taux de cisaillement suivies de mesures où on le fait décroître. Sur le rhéogramme, deux courbes sont obtenues, la courbe de retour ne coïncidant pas avec celle de l'aller. Une boucle d'hystérésis est alors obtenue. Une condition importante pour qu'un liquide soit thixotrope ou rhéopexe est que sa structure initiale puisse se régénérer naturellement par un repos suffisant. Le lien entre le temps caractéristique de déstructuration t_c et la durée d'observation t_E est formalisé par le nombre de Deborah De égal au rapport de ces deux temps (aussi appelé nombre de Weissenberg). Ces changements de structure caractéristiques du régime non-linéaire n'ont lieu que si l'amplitude de l'excitation dépasse une valeur critique. Au-dessous de cette valeur, le comportement est qualifié de linéaire mais dépend des valeurs de De . Aux temps courts ($De \gg 1$) et aux temps longs ($De \ll 1$), le comportement est qualifié respectivement d'élastique et de visqueux. Le domaine intermédiaire ($De \approx 1$) constitue le domaine viscoélastique linéaire.

I.2.1.2.3 Viscoélasticité linéaire

Quand un solide élastique est déformé élastiquement, il retrouve sa forme initiale à l'arrêt de la contrainte. L'autre cas extrême est le cas déjà abordé des fluides newtoniens. Ainsi, il existe des matériaux qui présentent à la fois un comportement de solide élastique et de fluide visqueux sous des conditions définies. On peut citer en particulier les solutions de polymères, les gels, les émulsions, les mousses, ...

Une des conséquences de ce type comportement est le développement de contraintes normales dans les directions normales à l'écoulement qui peut être à l'origine d'instabilités dans ce même écoulement. On définit ainsi la première et la deuxième différence de contraintes normales N_1 et N_2 de la manière suivante :

$$N_1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy} \quad (5)$$

$$N_2 = \sigma_{zz} - \sigma_{yy} \quad (6)$$

Avec :

$$\sigma_{xx} = -2\eta \frac{\partial V_x}{\partial x} ; \sigma_{yy} = -2\eta \frac{\partial V_y}{\partial y} ; \sigma_{zz} = -2\eta \frac{\partial V_z}{\partial z} \quad (7)$$

Et V_x , V_y et V_z les vitesses de l'écoulement dans les différentes directions de l'espace.

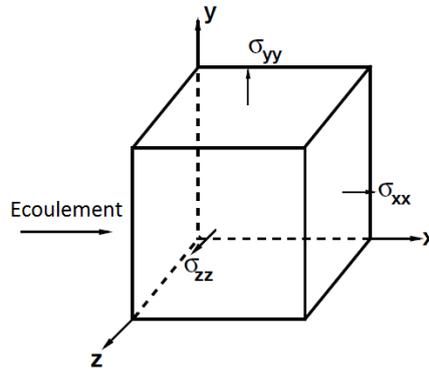


Figure 14 Contraintes se développant dans un écoulement

Le rapport entre la première différence de contraintes normales et la contrainte de cisaillement N_1/σ permet de caractériser le comportement viscoélastique d'un fluide. Si $N_1 \ll \sigma$ le fluide n'est pas élastique, si $N_1 \gg \sigma$ le fluide est viscoélastique.

Le test viscoélastique le plus fréquemment mis en œuvre est l'analyse oscillatoire encore appelée dynamique. Ce test consiste à imposer à l'échantillon un cisaillement oscillatoire de pulsation donnée ω . Ainsi la contrainte et le taux de cisaillement évoluent de manière sinusoïdale au cours du temps avec la même pulsation mais en présentant un certain déphasage de l'une par rapport à l'autre. La valeur de déphasage classiquement utilisée est celle entre la contrainte et la déformation de cisaillement, elle est notée δ . Le rapport représentant le ratio entre les amplitudes maximales de la contrainte et de la déformation de cisaillement est noté G^* et est appelé module de cisaillement. Dans la pratique, les deux grandeurs fondamentales de la rhéologie dynamique sont utilisées. Il s'agit du module de conservation défini par $G' = G^* \cos \delta$ et du module de perte défini par $G'' = G^* \sin \delta$. Ces deux grandeurs décrivent respectivement les propriétés élastiques et visqueuses de l'échantillon et sont fréquemment appelées respectivement module élastique et module visqueux. Le déphasage δ est relié à ces modules par la relation $\tan \delta = G''/G'$. Pour des valeurs de déphasage entre 0 et 45°, l'échantillon a un comportement plus élastique que visqueux, c'est le contraire pour des valeurs de déphasage entre 45 et 90°. Ces grandeurs rhéologiques dynamiques dépendent de l'échantillon, de la température mais aussi de la fréquence de cisaillement $\frac{\omega}{2\pi}$. Ce type d'études permet principalement de sonder la structure du fluide complexe et de faire des tests de suivi de produit dans l'industrie.

1.2.1.3 Rhéomètres classiques

Les rhéomètres traditionnellement utilisés pour déterminer les viscosités et les rhéogrammes des substances liquides sont les rhéomètres de type Couette et ceux de type Poiseuille. Dans les deux cas, la substance étudiée est soumise à un mouvement de cisaillement indépendant du temps. Les

rhéomètres de type Poiseuille ne seront pas présentés ici car leur fonctionnement semblable à celui des rhéomètres capillaires sera présenté plus tard.

Les substances analysées à l'aide d'un rhéomètre de type Couette sont cisailées entre deux surfaces solides, l'une au repos, l'autre mobile.

Les rhéomètres rotatifs cylindriques sont les plus utilisés. La substance étudiée est emprisonnée entre deux cylindres coaxiaux de même hauteur et de rayons différents. L'un des deux cylindres est fixe, l'autre mobile. Ensuite deux méthodes peuvent être envisagées. Pour la première, on impose au cylindre mobile un couple de rotation connu et l'on mesure sa vitesse angulaire. Pour la seconde, la vitesse angulaire est imposée au cylindre mobile et l'on mesure le couple résistant qu'il faut appliquer à l'autre cylindre pour qu'il reste immobile.

Pour mesurer une courbe d'écoulement, il est nécessaire de faire le lien entre le couple et la vitesse de rotation et le taux de cisaillement et la contrainte. A priori ceci n'est pas simple car la contrainte et le taux de cisaillement ne sont pas constants dans la géométrie. En absence d'instabilités hydrodynamiques, à bas nombre de Reynolds (i.e. si le tenseur d'inertie est négligeable devant le tenseur des contraintes), à bas nombre de Weissenberg (i.e. si les forces normales sont négligeables devant les forces visqueuses), lorsque l'écoulement est stationnaire, le couple de rotation Γ est directement relié à la contrainte de cisaillement par la formule $\sigma(R_1) = \frac{\Gamma}{2\pi h R_1^2}$ quel que soit le fluide étudié.

Pour trouver un lien entre la vitesse angulaire et le taux de cisaillement une loi constitutive pour le fluide est nécessaire. De façon générale, la première analyse faite par le rhéomètre consiste à supposer que le fluide est newtonien et qu'il ne glisse pas à la paroi. Des analyses plus poussées peuvent être ensuite réalisées dans un second temps. La viscosité est définie comme le rapport entre contrainte de cisaillement et taux de cisaillement.

Ces rhéomètres permettent de mesurer des viscosités entre 10^{-3} et 10^7 Pa.s cependant ils nécessitent l'utilisation d'un volume d'échantillon relativement important.

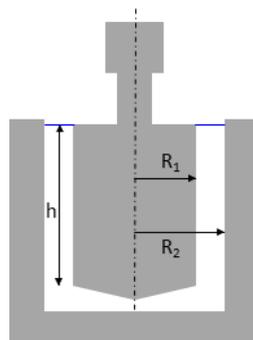


Figure 15 Géométrie à cylindres coaxiaux

Les rhéomètres rotatifs cône-plan sont aussi fréquemment utilisés. La substance étudiée est cette fois-ci emprisonnée entre un plateau et un cône dont l'axe est perpendiculaire au plan du plateau. L'angle entre le cône et le plan peut varier de 0,3 à 5°. Le principe de fonctionnement est similaire à celui du rhéomètre cylindrique rotatif. Dans ce cas, le cône est le solide mobile et le plateau le solide au repos. Cette géométrie permet d'avoir accès à la mesure de la première différence de contraintes normales N_1 . Cette mesure passe par la mesure de la force normale F_z qui s'applique sur le cône suivant son axe. Ainsi la mesure de F_z permet de remonter à N_1 par la relation suivante :

$$N_1 = \frac{2}{\pi R^2} F_z \quad (8)$$

Les avantages de ce type de géométrie est qu'elle requiert un volume d'échantillon plus faible et permet d'atteindre des taux de cisaillement plus élevées cependant il ne convient pas à l'étude de matériaux dont la structure est complexe et fragile car ils risquent d'être détruits dans le volume entre le cône et le plateau.

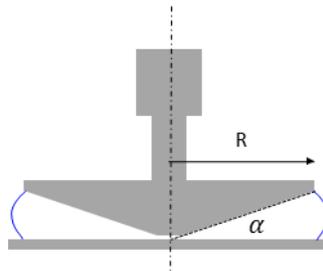


Figure 16 Géométrie cône-plan