

# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>iii</b>
<b>Guide de lecture</b>	<b>1</b>
<b>1 Transport de particules en milieu confiné</b>	<b>3</b>
1.1 Contexte du travail . . . . .	3
1.1.1 Motivations industrielles . . . . .	4
1.1.2 Ruptures technologiques . . . . .	5
1.1.3 Questions plus fondamentales . . . . .	8
1.2 Equations concernant le fluide . . . . .	11
1.2.1 Equation de Stokes . . . . .	11
1.2.2 Dynamique du fluide dans un tube . . . . .	12
1.2.3 Dynamique dans un milieu bidimensionnel : la cellule de Hele Shaw	13
1.3 Transport de particules . . . . .	15
1.3.1 Transport de particules dans un milieu libre . . . . .	15
1.3.2 Transport dans un milieu confiné dans une direction de l'espace . . .	16
1.3.3 Transport de particules confinées dans deux directions de l'espace . .	21
<b>2 Vue d'ensemble</b>	<b>27</b>
2.1 Positionnement du problème . . . . .	27
2.2 Une expérience modèle . . . . .	29
2.3 Questions soulevées . . . . .	30
2.3.1 Invasion du réseau . . . . .	30
2.3.2 Domaine de stabilité d'un cristal 1D de particules . . . . .	31
2.3.3 Une dynamique intermittente . . . . .	32
<b>3 Techniques expérimentales</b>	<b>35</b>
3.1 Techniques de gouttes en microfluidique . . . . .	35
3.1.1 Contexte . . . . .	35
3.1.2 Inconvénients des systèmes usuels de fabrication de gouttes . . . . .	36
3.1.3 Vannes microfluidiques . . . . .	38

3.2	Alimentation en fluide . . . . .	42
3.3	"Flow Lithography" . . . . .	44
3.4	Plusieurs techniques, un objectif . . . . .	48
	Annexe A : Technique de lithographie douce . . . . .	50
	Annexe B : Technique de gouttes en microfluidique . . . . .	52
	Annexe C : Technique de vannes en microfluidique . . . . .	55
	Annexe D : Protocole de fabrication de vannes microfluidiques externes . . . . .	57
<b>4</b>	<b>Transport unidimensionnel de particules confinées</b>	<b>59</b>
4.1	Cadre d'étude . . . . .	59
4.2	Résultats expérimentaux . . . . .	61
4.3	Modélisation du problème . . . . .	65
4.3.1	Analogie électrostatique . . . . .	65
4.3.2	Relation constitutive de l'écoulement . . . . .	68
4.3.3	Transition d'invasion . . . . .	69
4.4	Robustesse des résultats . . . . .	71
4.4.1	Influence de la dimension transverse du réseau . . . . .	71
4.4.2	Influence de la présence d'obstacles . . . . .	73
4.4.3	Influence de la nature et de la forme des particules . . . . .	75
4.5	Au delà de l'hydrodynamique . . . . .	77
4.5.1	Modèle d'exclusion . . . . .	78
4.5.2	Trafic réel . . . . .	80
<b>5</b>	<b>Dynamique non-linéaire d'un cristal hydrodynamique 1D</b>	<b>89</b>
5.1	Setup et enjeux . . . . .	89
5.2	Résultats expérimentaux . . . . .	92
5.3	Modélisation continue . . . . .	95
5.3.1	Calcul par expansion du gradient . . . . .	95
5.3.2	Comparaison modèle continu et modèle discret . . . . .	99
5.4	Extension à d'autres systèmes . . . . .	100
5.4.1	Autres systèmes, même phénoménologie . . . . .	101
5.4.2	Apport de l'étude au contrôle en microfluidique . . . . .	102
<b>6</b>	<b>Transport de particules dans un réseau fluide 2D</b>	<b>109</b>
6.1	Données expérimentales . . . . .	109
6.1.1	Expérience sur un réseau étendu d'obstacles . . . . .	109
6.1.2	Expérience sur un réseau d'obstacles restreint transversalement . . . . .	113
6.2	Modélisation numérique du problème . . . . .	115
6.2.1	Description du code . . . . .	115
6.2.2	Modélisation du changement de lien du réseau . . . . .	117

---

6.2.3	Validation du code . . . . .	119
6.3	Résultats numériques . . . . .	121
6.3.1	Relation constitutive 1D . . . . .	121
6.3.2	Régime transitoire 1D . . . . .	124
6.4	Dynamique intermittente des réseaux envahis . . . . .	126
6.4.1	Valeur stérique maximale égale à 40. Envahissement à $j > j^*$ . . . . .	128
6.4.2	Valeur stérique maximale égale à 2. Envahissement à $j < j^*$ . . . . .	131
<b>7</b>	<b>Ecoulement de cristaux 2D de particules</b>	<b>135</b>
7.1	Positionnement du problème . . . . .	135
7.2	La technique de Flow Lithography . . . . .	136
7.3	Ecoulement d'un cristallite carré . . . . .	138
7.3.1	Expérience . . . . .	138
7.3.2	Modélisation . . . . .	139
7.4	Perspectives . . . . .	142
	<b>Bibliographie</b>	<b>145</b>



# Guide de lecture

Ce manuscrit est organisé en 7 chapitres dans lesquels je présente mes travaux de thèse, combinant des approches expérimentale, numérique et théorique.

Le premier chapitre introductif décrit les propriétés du transport de particules en milieu confiné. Il décrit le contexte théorique mais aussi pratique de ce travail et rappelle quelques outils théoriques utiles dans le reste du manuscrit.

Dans le chapitre 2, je présente notre positionnement du problème ainsi que les différentes questions que nous soulèverons dans ce manuscrit. Ce chapitre 2 a pour but de donner au lecteur une vue d'ensemble de la thèse.

Pour répondre à ces questions, différentes expériences microfluidiques ont été mises en place. Le chapitre 3 relate les différentes techniques expérimentales utilisées. Des annexes ont été ajoutées à ce chapitre pour permettre au lecteur novice en microfluidique de se familiariser avec les techniques courantes.

Le chapitre 4 traite du cas précis de l'écoulement de particules dans un réseau d'obstacles microfluidique le long d'un unique chemin préférentiel. Cette étude expérimentale et théorique fera ressortir des caractéristiques communes à de nombreuses situations de trafic.

Ce travail est poursuivi par l'étude de la dynamique non linéaire d'un cristal hydrodynamique 1D, décrite dans le chapitre 5.

Le cas bidimensionnel est ensuite traité dans le chapitre 6. Il a pour objet la dynamique intermittente de particules dans des réseaux d'obstacles microfluidiques. Cette étude expérimentale s'appuie aussi sur des outils numériques mis en place pour une meilleure compréhension de cette dynamique particulière.

Enfin, le dernier chapitre décrit les premières expériences effectuées sur l'écoulement d'objets solides confinés dans des cellules microfluidiques. Il décrit l'écoulement d'un cristallite ordonné de particules advectées par le fluide en mouvement.



# Transport de particules en milieu confiné

Depuis les expériences de vulgarisation de GI Taylor (voir les vidéos ici : [http://modular.mit.edu:8080/ramgen/ifluids/Low\\_Reynolds\\_Number\\_Flow.rm](http://modular.mit.edu:8080/ramgen/ifluids/Low_Reynolds_Number_Flow.rm)), il est connu que les propriétés d'écoulement des fluides à petite échelle sont bien différentes que celles à grande échelle à cause de l'absence de l'inertie. Dans ce travail, je m'intéresse à la propriété de transport de particules lorsque celle-ci sont confinées dans au moins une direction de l'espace. Je vais montrer que cela modifie totalement la physique du transport des particules en changeant la nature et la portée des interactions entre elles.

Une des manières simples de réaliser des expériences en géométrie confinée est d'utiliser les techniques de microfluidique qui permettent facilement de faire des circuits fluidiques à petite échelle (de l'ordre de la dizaine de micron, cf chapitre 3 pour les techniques utilisées). La plupart des travaux présentés dans ce chapitre ainsi que mon travail expérimental s'inscrivent dans ce domaine. Ce chapitre est consacré à expliquer les enjeux de mon étude mais aussi le contexte dans lequel elle a été menée.

## 1.1 Contexte du travail

De nombreuses problématiques industrielles reposent en réalité sur la compréhension du transport de particules en milieu confiné. Nous verrons également que ce mode de transport particulier a permis le développement de nouvelles techniques de tri ou de mélange, créant de réels sauts technologiques. Puis nous terminerons par clairement mettre en avant les questions physiques adjacentes à ce problème.

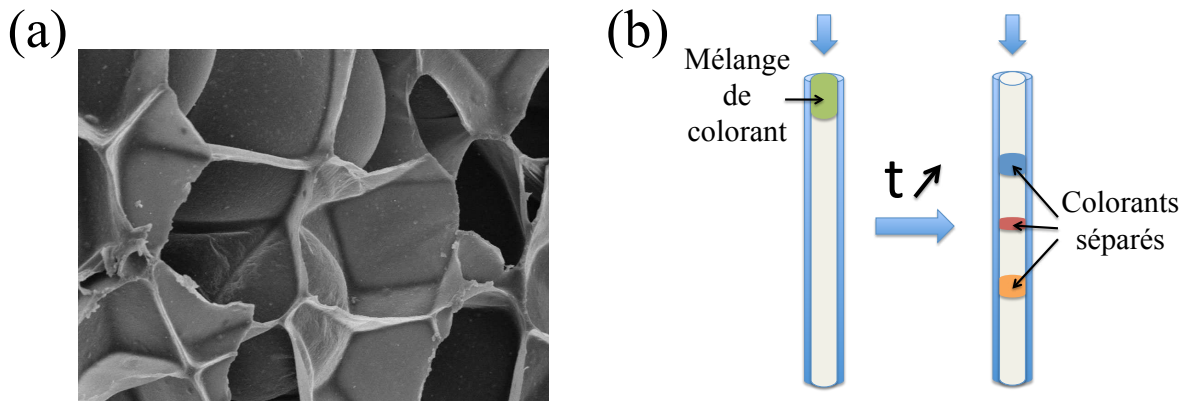


FIGURE 1.1: Exemples de problématiques liées au transport en milieu confiné. a) Vu au microscope électronique à balayage d'une matrice de filtre céramique. b) Schéma de principe d'une colonne chromatographique.

### 1.1.1 Motivations industrielles

Je ne vais citer que deux exemples qui me semblent éloquents, mais on peut facilement évoquer d'autres situations dans lesquelles mes travaux peuvent s'inscrire.

Industriellement, tous les techniques de filtration correspondent à des situations d'écoulements de particules de tailles ou propriétés (chimiques ou physiques) différentes, dans une matrice donnée, comme cela est représenté sur la figure 1.1. Les particules, du fait de leur taille ne vont pas toutes suivre le même chemin et certaines vont être piégées dans les hétérogénéités du filtre. Ainsi c'est la différence d'écoulement qui va permettre de sélectionner les particules que l'on souhaite. Comprendre comment ces particules se déplacent dans les hétérogénéités de la structure est essentiel pour fabriquer des filtres efficaces. Ce tri peut être stérique comme pour un filtre céramique (figure 1.1a) mais la différence d'écoulement peut être induite par la différence d'affinité entre les particules et le milieu qu'elles traversent. La chimie analytique tire parti de cette idée (voir [1] pour plus de détails) en faisant s'écouler les particules dans des milieux ayant des charges en surface par exemple (figure 1.1b). Et c'est bien la différence d'écoulement qui permet ce tri. Comprendre comment les particules se déplacent dans les hétérogénéités de la structure est donc nécessaire pour fabriquer des filtres efficaces.

Autre problématique dans laquelle le confinement a une place prépondérante : la récupération assistée du pétrole [2]. En simplifiant, nous pouvons distinguer deux phases dans l'extraction du brut. Lors de la première phase, la pression du sous-sol est supérieure à la pression en surface. Le pétrole s'extrait simplement ; puis les pressions s'équilibrent. Il est ensuite nécessaire de pousser sur le brut pour qu'il remonte à la surface. Sans rentrer dans les détails techniques, les industries pétrolières ont pris le parti de pousser le brut avec de



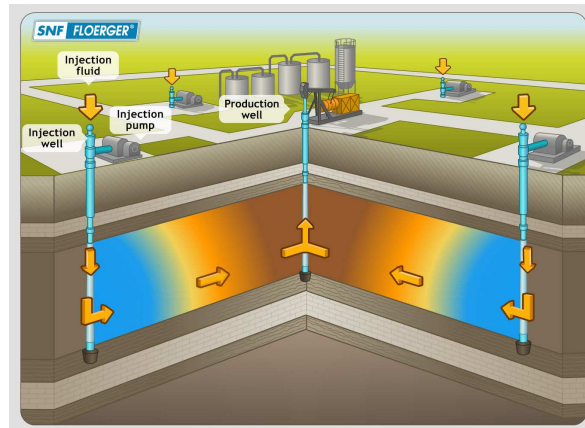


FIGURE 1.2: La récupération assistée (ou améliorée) du pétrole consiste à pousser l'huile par injection depuis la surface d'une phase aqueuse. Il s'ensuit une émulsification *in situ*. Tout le défi étant alors de récupérer ces gouttes de brut dans la matrice poreuse de la roche.

l'eau et des tensioactifs, *via* des puits secondaires, créant une émulsification *in situ* dans le gisement ; comme l'explique le schéma 1.2. Il faut ensuite ramener à la surface ces gouttes de brut, sachant qu'elles vont se loger dans le réseau d'anfractuosités de la roche. On voit aisément en quoi comprendre l'écoulement de particules (ici des gouttes de pétrole) dans des réseaux complexes (ici les anfractuosités de la roche) est un enjeu majeur de la récupération assistée de pétrole (voir [3] pour une réponse plus spécifique à ce problème).

Il me semble que ces deux exemples montrent significativement l'intérêt pratique d'étudier de tels systèmes.

Les propriétés particulières de ce transport ont aussi permis l'émergence de nouvelles technologies.

### 1.1.2 Ruptures technologiques

La microfluidique est devenue au cours de la dernière décennie une véritable science à part entière (voir [4] ou [5] pour les enjeux actuels et [6] pour une revue). Je vais présenter ici quelques exemples d'expériences microfluidiques dont les propriétés étonnantes reposent toutes sur le confinement et ont permis la mise au point de nouvelles techniques. Elles ont pour application le tri, le mélange et le codage d'information.

Le tri est souvent une étape cruciale dans de nombreux procédés exigeant par exemple une taille précise de particule. Avec la mise au point de "métamatériaux hydrodynamiques"

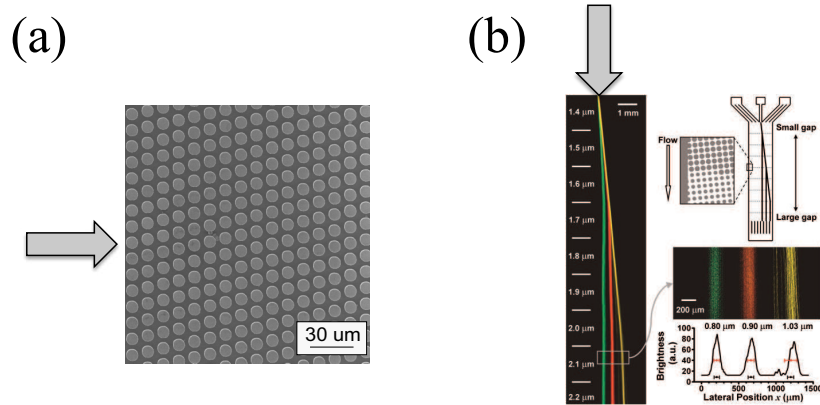


FIGURE 1.3: Description de l'expérience permettant une séparation haute résolution. Extrait de [7]. a) Vue au microscope du réseau microfluidique expérimental. Le réseau est orienté d'un certain angle par rapport à la direction d'écoulement de la phase continue, indiquée par une flèche. b) Séparation haute résolution de microsphères de taille 0.8, 0.9, et 1  $\mu\text{m}$  avec la matrice présentée en a. Chaque couleur correspond au chemin suivi par les particules de taille différente. Les barres en rouge sur le diagramme de probabilité de présence représente la largeur des pics d'intensité.

en 2004, l'équipe de Bob Austin ([7] et [8] notamment) nous montre une nouvelle voie pour relever ce défi. Ils ont tiré parti d'une cellule microfluidique formé d'un réseau d'obstacles, voir figure 1.3. Ce réseau d'obstacles est orienté d'un certain angle par rapport à la direction d'écoulement. Ainsi le nombre et la forme des interactions de contact avec les plots dépendent de la taille des particules qui s'écoulent. Un tel procédé s'avère alors efficace pour effectuer par exemple le tri de microsphères de taille 0.8, 0.9 et 1  $\mu\text{m}$  comme cela est le cas sur la figure 1.3b. Cette technique a ensuite été appliquée avec succès au tri de cellule sanguines ([9], [10]) ou de biomatériels divers ([8], [11]). Cette manière de trier est en constante amélioration et ils ont récemment mis en avant que la forme des obstacles jouait aussi un rôle intéressant. Ils ont réussi, grâce à des obstacles triangulaires ([12], [13]), à améliorer significativement les performances de tri.

Dans la même idée d'innovation technologique, le transport de particules en milieu confiné a permis d'inventer une nouvelle technique de mélange. Classiquement, l'absence d'inertie dans les écoulements à petite échelle rend tout procédé de mélange complexe. En introduisant des boucles dans lesquelles circulent des bulles d'air, l'équipe de Whitesides a réussi à fabriquer un mélangeur particulièrement efficace en microfluidique [14]. La figure 1.4 représente la série de boucles qui permet le passage de deux fluides différents mais aussi le passage de bulles qui vont permettre ce mélange. Tout repose sur le fait que, dû au confinement, les bulles alternent leur passage dans les deux zones de fluide et transportent

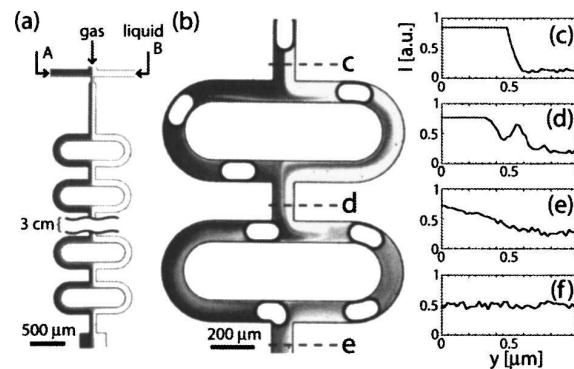


FIGURE 1.4: Système fluide permettant un mélange efficace de deux fluides *via* le transport de bulles confinées, d'après [14]. a) Entrée du fluide 1 d'intensité lumineuse normalisée de valeur 1. b) Entrée du fluide 2 d'intensité lumineuse normalisée de valeur 0. c), d), e) et f) Profil d'intensité en chaque noeud. Cela donne une mesure du mélange ; 0.5 correspond à un mélange homogène.

de cette manière un fluide dans un autre. Ce mode de transport des bulles s'avère alors efficace pour le mélange.

Ce système reposant sur le transport de bulles à travers une boucle a été largement étudié, car il possède des propriétés intéressantes. Il permet aussi de concevoir un système logique en microfluidique [15] ou bien un système de codage/décodage d'information [16]. Dans le cas du système logique, représenté sur la figure 1.5a, (voir les vidéos pour plus de détail : <http://www.sciencemag.org/content/315/5813/832/suppl/DC1>) ils ont réussi à créer un système qui permet de faire les opérations logiques OU, ET, INV en considérant des bulles comme élément de langage. La présence d'une bulle code le 1 et l'absence code le 0. Par exemple, lorsque deux bulles arrivent à une jonction de type "ET", seule une passe au-delà de la jonction pour réaliser la fonction logique. Ce design intelligent prend parti des interactions entre bulles pour effectuer ces différentes opérations.

Même idée, autre application ; celle qui est représentée sur la figure 1.5b. Dans ce travail, Whitesides *et al* [16] prennent un système de deux boucles successives dans lequel ils injectent des particules à une fréquence donnée. Ils codent de l'information à travers la distance interparticule. La première boucle joue le rôle de codage en modifiant la distance inter-particule ; la deuxième boucle décode l'information et redonne la distance initiale entre les particules. Ainsi en donnant les distances interparticules codées d'un train de gouttes, seules les personnes connaissant les dimensions des boucles pourront décoder l'information et connaître la vraie distance initiale. Par le jeu de deux distances (codant 0 et 1), on peut alors faire transiter n'importe quel message codé par ce système !

Ces systèmes représentent des nouvelles techniques de codage d'information de manière

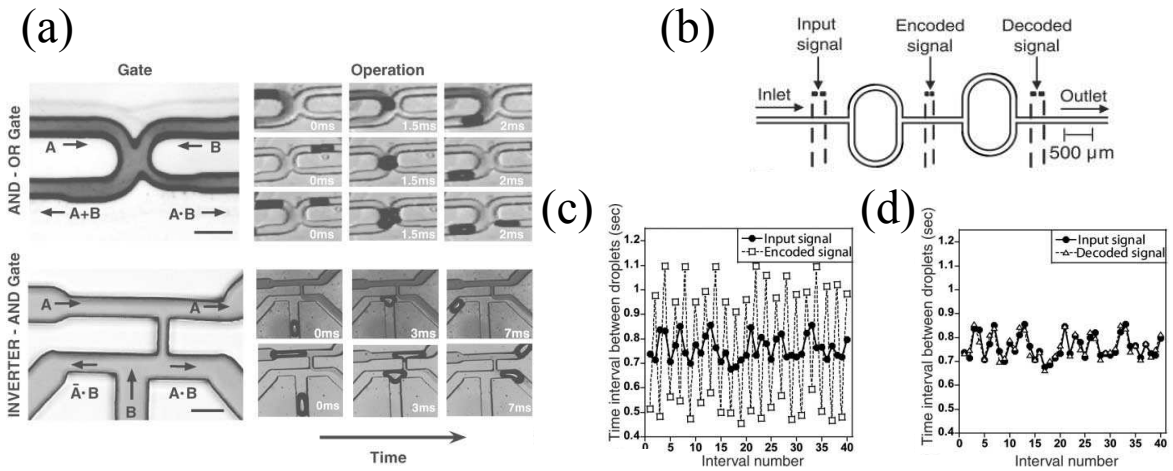


FIGURE 1.5: Systèmes logiques fluidiques. a) Système permettant de réaliser les opérations logiques ET, OU, INV ; la présence de bulle jouant le rôle de la valeur binaire 1 et son absence la valeur 0, d'après [15]. b) c) d) Système permettant le codage d'information, d'après [16]. b) Système expérimental. Des particules de distance initiale  $\lambda_1$  passe à travers une jonction pour être codées en  $\lambda_2$  et une deuxième pour être décodées en  $\lambda_1$ . c) et d) Encodage et décodage du signal.

fluidique et pourraient s'avérer efficaces dans des situations où l'information électrique est difficilement transmissible.

A travers ces exemples, on voit que ce mode particulier de transport de particules crée des avancées technologiques pour le tri, le mélange ou le codage d'information. Mais avant tout, il est important de voir quelles sont les questions physiques adjacentes à ces problèmes.

### 1.1.3 Questions plus fondamentales

Un nouveau pan de la microfluidique a réellement vu le jour lorsqu'on a réussi à faire des gouttes dans des microcanaux grâce aux techniques de lithographie douce. Les idées d'applications en chimie ou en biologie ont fortement augmenté et des progrès spectaculaires ont ensuite été faits. Or on s'aperçoit que la première publication qui relate de la fabrication de gouttes à haut débit en microfluidique s'intéresse aux motifs pris par ces particules sous écoulement, [17]. Dans cet article fondateur de Thorsen *et al*, les auteurs caractérisent les différentes formes de train de gouttes qu'ils obtiennent avec une jonction en T, ce qui est représenté sur la figure 1.6. Tout d'abord, on peut noter que les particules ne se dispersent pas aléatoirement mais semblent former des cristaux 1D ou 2D. La question

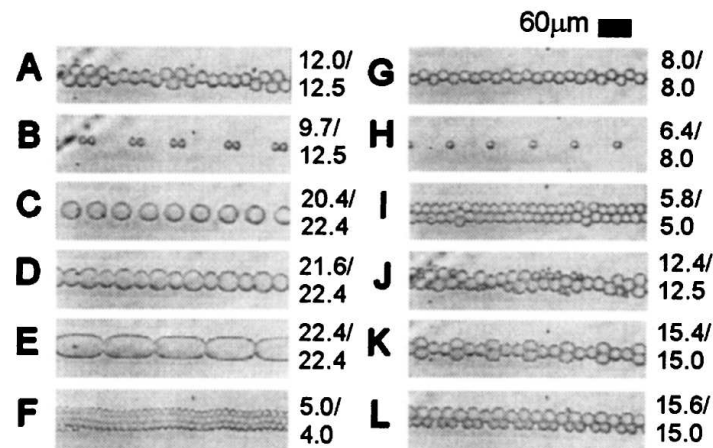


FIGURE 1.6: Motifs de trains de gouttes dans des microcanaux de largeur  $60 \mu\text{m}$  et hauteur  $9 \mu\text{m}$  pour différentes pressions en eau et huile/surfactant. Photo extraite de [17]

naturelle et primordiale que l'on se pose en voyant ces clichés est : **quel est le domaine de stabilité de ces différents cristaux?** Certains semblent stables comme les cristaux 1D de singulets de particules (figure 1.6 C et H) ou de doublets (B) ainsi que les cristaux 2D (I-L). Des ondes semblent aussi se propager parallèlement à l'écoulement le long du cristal 2D représenté en F.

La compréhension de l'apparition de ces différents motifs est encore d'actualité. Dans le travail d'Hashimoto *et al* [18], les auteurs se demandent comment se développe un défaut dans un cristal de bulles. Tandis que dans le travail de Beatus *et al* [19], les auteurs cherchent à comprendre l'apparition d'ondes de densité dans un écoulement aléatoire 2D de gouttes. Dans ces articles, toutes ces formes n'ont jamais été pleinement expliquées. Mon travail de thèse a pour objectif de comprendre l'ensemble de ces motifs.

Une autre question fondamentale, reliée directement à ce type de système, est de comprendre **la complexité spatiotemporelle** qui existe dans ces systèmes, comme cela est présenté dans les travaux de Garstecki [20]. La figure 1.7a représente le système expérimental. Il s'agit d'une cellule microfluidique possédant plusieurs intersections entre l'eau et l'air où des bulles d'air peuvent se former. Le débit en eau est fixé et le paramètre de contrôle est la pression imposée en air. En changeant  $P_{\text{air}}$ , on modifie la taille et la fréquence d'injection des bulles d'air dans le système. L'observable est la forme du train de bulles créé dans la chambre adjacente. Ils ont démontré que ce générateur de bulles présente des motifs oscillatoires stables de bulles, en temps et en espace, avec de longues périodes de répétition. A bas débit, le dispositif produit un flux stable de bulles de taille uniforme. Lorsque le débit augmente, le système voit des dynamiques complexes caractérisées par des cycles stables de plus de 20 bulles par période et qui se répètent sur plus de 100 périodes. La synthèse de

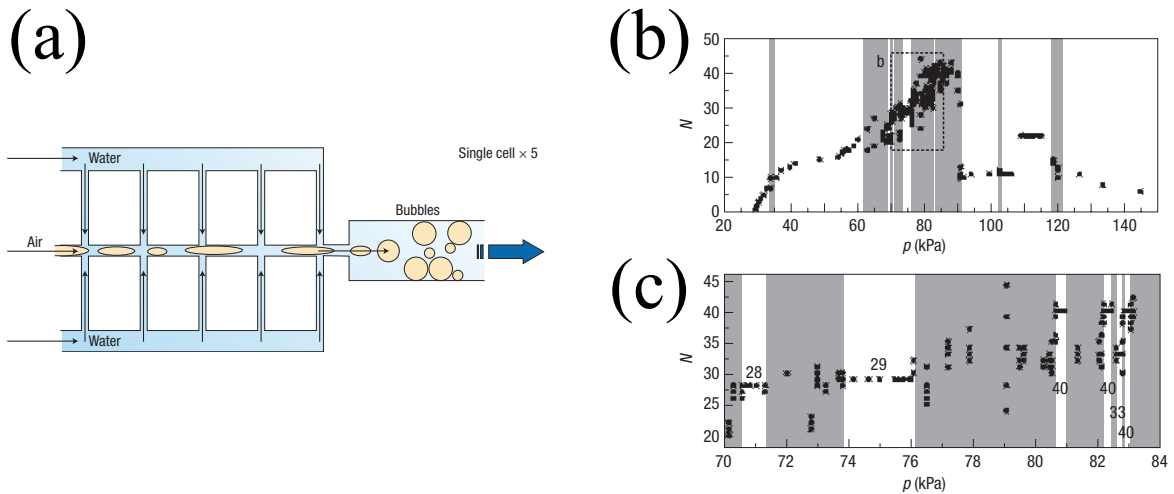


FIGURE 1.7: Mise en évidence de la complexité spatiotemporelle, d'après [20] a) Schéma du dispositif expérimental. b) Nombre de bulles ( $N$ ) dans une période en fonction de la pression imposée en air. Les régions dans lesquelles les trajectoires cycliques sont stables (blanc) sont séparées par des régions de dynamique irrégulière (gris). Il a été vérifié que ce comportement ne change pas sur de longues périodes (100 périodes). c) Grossissement d'une section du diagramme précédent marquée par la ligne pointillée.

ces résultats a été reportée sur les figures 1.7b et c. Cette courbe nous indique les régions où cette dynamique est stable (en blanc sur la figure) et où elle est irrégulière (en grisé sur la figure). On peut lire sur ce graphe la taille des paquets de gouttes qui se répètent dans le temps et ce pour différentes valeurs de pression en air. Cela nous interroge sur l'origine de cette complexité spatiotemporelle. Comprendre comment interagissent ces particules peut nous apporter des réponses. Par ailleurs, cette expérience a été vue comme un bon moyen de sonder la complexité auto-organisée [21]. Bien que cela soit discutable, en tout cas, cette problématique est une particularité de l'écoulement de particules en milieu confiné et reste encore une question ouverte aujourd'hui. En effet, de nombreux travaux se sont concentrés sur la physique d'une goutte à l'échelle unique (formation des gouttes, cassage ou déformation ; voir [22] pour une revue récente), mais peu se sont concentrés sur la physique de  $N$  objets confinés en écoulement, à l'exception notable du groupe de Bar-Ziv ([23], [24]) qui a étudié la stabilité d'un cristal 1D de gouttes dans une cellule microfluidique. Même si mes travaux ne vont pas répondre directement à la question posée par l'expérience de Garstecki *et al*, il est important d'avoir ce type de question en tête.

Les interactions entre particules sont responsables des différents phénomènes présentés précédemment. Il convient maintenant de faire un état des connaissances actuelles et de présenter certains calculs simples pour se faire une bonne image du problème.

## 1.2 Equations concernant le fluide

### 1.2.1 Equation de Stokes

Avant tout, il est important de faire un petit rappel sur la physique à bas nombre de Reynolds. Le lecteur familier de ces écoulements pourra sauter cette partie ou l'approfondir à travers ces livres ([25], [26]) ou revues ([27], [28]).

La vitesse  $\underline{v}$  d'un fluide newtonien est donnée en tout point par la solution de l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \left( \frac{\partial}{\partial t} + \underline{v} \cdot \underline{\nabla} \right) \underline{v} = -\underline{\nabla} P + \eta \nabla^2 \underline{v} + \rho \underline{f} \quad (1.1)$$

$$\text{avec} \quad \underline{\nabla} \cdot \underline{v} = 0 \quad (\text{incompressibilité du fluide}), \quad (1.2)$$

et les conditions aux limites adaptées à l'écoulement considéré.  $P$  est la pression,  $\eta$  est la viscosité du fluide,  $\rho$  sa masse volumique et  $\underline{f}$  correspond aux autres forces qui peuvent agir sur le fluide. L'équation de Navier-Stokes est un bilan de quantité de mouvement : chacun de ses termes est homogène à une force en volume. Le rapport du terme inertiel de l'équation 1.1,  $\rho(\underline{v} \cdot \underline{\nabla})\underline{v}$ , et du terme de forces visqueuses,  $\eta \nabla^2 \underline{v}$ , définit le nombre de Reynolds. Pour un écoulement stationnaire de vitesse  $U$  et de taille caractéristique  $L$ , le rapport de ces deux termes est d'ordre :

$$Re = \frac{\rho L U}{\eta} \quad (1.3)$$

Cette quantité sans dimension permet de caractériser le régime de l'écoulement considéré. Deux écoulements de même géométrie mais à deux échelles différentes sont dits semblables si leurs nombres de Reynolds sont égaux. Les propriétés d'un écoulement sont conservées lors d'un changement d'échelle si la viscosité est modifiée en sens inverse. Dans les écoulements considérés durant cette thèse, l'échelle de longueur sera la dizaine de microns et la vitesse sera de l'ordre de la centaine de microns/s. Cela équivaut à un nombre de Reynolds de l'ordre de  $10^{-3}$ . Dans ce régime de petit nombre de Reynolds, les forces visqueuses dominent les effets inertiels. L'équation 1.1 se simplifie alors pour donner l'équation de Stokes :

$$-\underline{\nabla} p + \eta \nabla^2 \underline{v} = \rho \underline{f} \quad (1.4)$$

$$\text{avec encore} \quad \underline{\nabla} \cdot \underline{v} = 0 \quad (\text{incompressibilité du fluide}), \quad (1.5)$$

Cette équation est linéaire et indépendante du temps. Les écoulements à bas nombre de Reynolds sont donc réversibles.

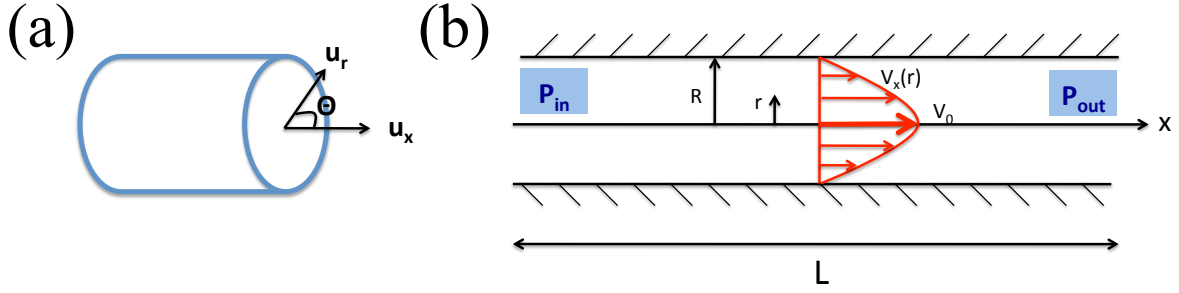


FIGURE 1.8: Schéma d'un tube cylindrique : a) Vue en 3D en coordonnées cylindriques. b) Coupe du tube selon l'axe d'écoulement ( $Ox$ ).

Pour être complet, il est nécessaire de calculer le profil de vitesse dans les canaux que nous allons rencontrer : un tube de section circulaire, un tube de section carré et une cellule de Hele-Shaw.

### 1.2.2 Dynamique du fluide dans un tube

Considérons un tube circulaire de section  $S = \pi R^2$  et de longueur  $L$ . On calcule l'écoulement induit par une différence de pression,  $\Delta P = P_{\text{in}} - P_{\text{out}}$ , entre l'entrée et la sortie du tube comme représenté sur la figure 1.8.

Dans cette situation, il y a invariance par rotation autour de l'axe ( $Ox$ ) ; la vitesse est donc indépendante de la coordonnée  $\theta$ . Le système est aussi invariant par translation selon  $u_x$  ; la vitesse ne dépend pas non plus de cette coordonnée. On peut alors écrire la conservation de la masse dans les coordonnées cylindriques au vu de ces 2 informations :

$$\nabla \cdot \underline{v} = \frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_\theta}{\partial \theta} + \frac{\partial v_r}{\partial r} = \frac{\partial v_r}{\partial r} = 0 \quad (1.6)$$

Ainsi la vitesse radiale est nulle. La seule composante non nulle de la vitesse est la vitesse  $v_x$ . On projette alors l'équation de Stokes dans un plan parallèle à l'écoulement comme sur la figure 1.8b pour en déduire le profil de vitesse, dit de Poiseuille :

$$v_x = \frac{\Delta P}{4\eta L} (R^2 - r^2) \quad (1.7)$$

On écrit ensuite la conservation du débit pour obtenir la relation suivante :

$$Q = \frac{\pi R^4 \Delta P}{8\eta L} \quad (1.8)$$

Ainsi il existe une relation de proportionnalité entre la différence de pression et le débit du fluide. Ce coefficient de proportionnalité est indépendant du débit ou de la pression mais dépend uniquement de la géométrie du tube et de la viscosité du fluide en écoulement. On



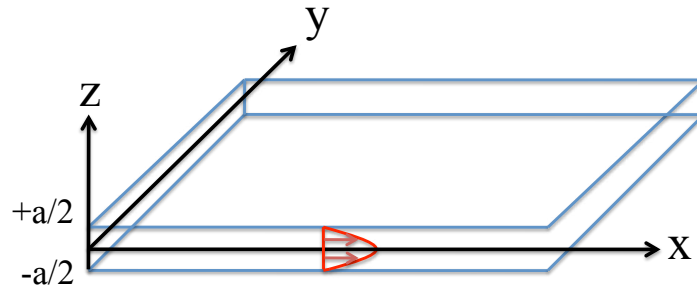


FIGURE 1.9: Schéma d'une cellule de Hele-Shaw de hauteur  $a$ . En rouge est représenté le profil de vitesse selon l'axe ( $Ox$ ).

introduit alors la **résistance hydrodynamique**,  $R$ , d'un tube et sa **conductance**,  $G$ , qui sont des paramètres qui vont nous servir tout au long de ce travail.

$$R_{\text{tube}} = \frac{8\eta L}{\pi R^4} \quad \text{et} \quad G_{\text{tube}} = \frac{1}{R_{\text{tube}}} = \frac{\pi R^4}{8\eta L} \quad (1.9)$$

Par ailleurs, il est aussi important pour nous de s'intéresser aux tubes de section carrée car il s'agit de la géométrie la plus courante pour les canaux en microfluidique. Des calculs assez lourds permettent de calculer la correction à l'équation 1.8 de manière exacte mais je ne vais pas les détailler. Ils sont clairement écrits dans un article publié par Morris en 2004 [29]. On peut de nouveau écrire une relation entre la différence de pression et le débit :

$$\Delta P = \frac{a\mu QL}{WH^3} \quad (1.10)$$

$$a = 12 \left[ 1 - \frac{192H}{\pi^5 W} \tanh\left(\frac{\pi W}{2H}\right) \right]^{-1} + o(W/H) \quad (1.11)$$

Ce qui est important de retenir est que l'on peut de nouveau définir une résistance hydrodynamique dépendant uniquement de la géométrie du canal et de la viscosité du liquide.

### 1.2.3 Dynamique dans un milieu bidimensionnel : la cellule de Hele Shaw

Et enfin, il est important de calculer le profil de vitesse dans le cas d'une cellule de Hele-Shaw, car j'ai utilisé dans mes expériences ce type de géométrie. Il s'agit d'un canal fluide constitué de deux plaques très rapprochées l'une de l'autre entre lesquelles on injecte un ou plusieurs fluides, voir figure 1.9. Ces calculs sont reportés dans le livre de Guyon *et al* [26]; je vais les résumer ici. Entre les plaques, l'écoulement est quasiment parallèle au plan ( $xOy$ ) et on a donc :  $v_y \sim 0$ . Les échelles de longueur selon  $Oz$  (de l'ordre de  $a$ ) sont très inférieures à celles dans le plan (de l'ordre de  $L$ ). On en déduit un ordre de

grandeur de la composante  $v_z$  :

$$v_z \sim \frac{a}{L} v_{x(y)} \ll v_{x(y)} \quad (1.12)$$

La grande différence des échelles de longueur perpendiculairement et parallèlement au plan des plaques permet d'écrire les inégalités suivantes :

$$\frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial x^2} \ll \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial z^2} \quad \text{et} \quad \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial y^2} \ll \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial z^2} \quad (1.13)$$

Compte-tenu des relation 1.12 et 1.13, l'équation de Stokes (eq. 1.4) se ramène à :

$$\eta \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} = -\frac{\partial P}{\partial x} \quad \text{et} \quad \eta \frac{\partial^2 v_y}{\partial z^2} = -\frac{\partial P}{\partial y} \quad (1.14)$$

sachant que :

$$\frac{\partial P}{\partial z} \ll \frac{\partial P}{\partial x} \quad \text{et} \quad \frac{\partial P}{\partial z} \ll \frac{\partial P}{\partial y} \quad (1.15)$$

Soit sous forme vectorielle :

$$\eta \frac{\partial^2 \underline{v}_{\parallel}}{\partial z^2} = -\underline{\nabla}_{\parallel} P \quad (1.16)$$

$$P = P(x, y) \quad (1.17)$$

L'indice  $\parallel$  indique que seules les composantes selon  $(Ox)$  et  $(Oy)$  doivent être prises en compte. Les variations lentes de la vitesse selon les directions  $x$  et  $y$  par rapport aux variations rapides selon  $z$  permettent d'écrire :

$$\underline{v}_{\parallel}(x, y, z) = \underline{v}_{\parallel}(x, y, 0) \times f(z) \quad (1.18)$$

où  $f(z)$  est une fonction que l'on détermine ci-dessous par intégration de l'équation 1.16, en tenant compte des conditions aux limites  $v(x, y, a) = v(x, y, 0) = 0$ . La fonction  $f(z)$  trouvée est le profil parabolique de Poiseuille, et on a finalement le champ de vitesse :

$$\underline{v}_{\parallel}(x, y, z) = -\frac{a^2}{2\eta} \left(1 - \frac{z^2}{a^2}\right) \underline{\nabla}_{\parallel} P \quad (1.19)$$

et une vitesse moyenne :

$$\underline{v}_{\parallel} = \frac{1}{2a} \int_{-a}^a \underline{v}_{\parallel} dz = -\frac{a^2}{3\eta} \underline{\nabla}_{\parallel} P \quad (1.20)$$

Ainsi pour une particule ressentant la totalité du profil de vitesse, il n'y aucune perte de généralité en ne considérant que la moyenne de cette vitesse. Cela est le cas pour des particules de taille supérieure ou égale à  $a$ , confinée dans cette cellule. On retrouve dans cette expression la relation linéaire entre la vitesse et le gradient de pression que l'on avait pour le cas de simples canaux. On peut de nouveau définir une résistance hydrodynamique :

$$R_{\text{Hele-Shaw}} = \frac{a^2}{3\eta} \quad (1.21)$$

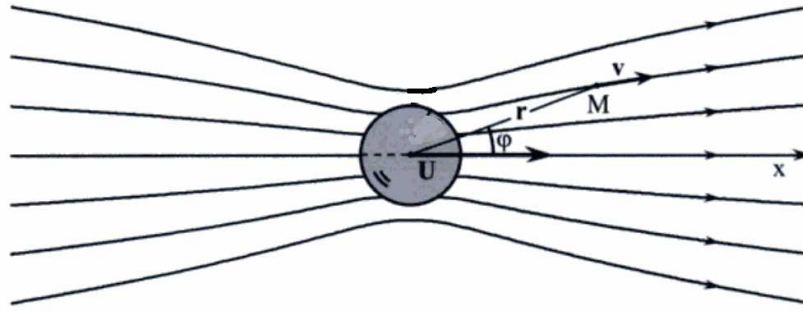


FIGURE 1.10: Écoulement autour d'une sphère se déplaçant à une vitesse  $U$  dans un fluide au repos. L'écoulement principal est selon l'axe  $(Ox)$ . Extrait de [26].

Nous venons donc de déterminer comment se comporte le fluide lorsque celui-ci est confiné. Nous allons maintenant décrire le transport de particules, dans un écoulement libre puis lorsque les particules sont confinées dans une ou deux directions de l'espace.

## 1.3 Transport de particules

### 1.3.1 Transport de particules dans un milieu libre

On va tout d'abord s'intéresser au champ de vitesse autour d'une sphère en mouvement dans un milieu infini. Pour plus de détail, il peut être utile de se référer aux livres de Happel *et al* [25] ou de Guyon *et al* [26].

On suppose le fluide au repos à l'infini et on exprime le champ de vitesse dans les coordonnées sphériques  $(r, \theta, \phi)$  tel que l'axe  $(Ox)$  où  $\phi = 0$  coïncide avec la direction de la vitesse  $U$  de la sphère de rayon  $R$ , voir figure 1.10.

Il y a invariance par rotation autour de l'axe  $(Ox)$ , le champ de vitesse est donc de révolution autour de cet axe avec une vitesse  $v_\theta$  qui est nulle et des composantes  $v_r$  et  $v_\phi$  indépendantes de  $\phi$ . On trouve après calcul (développé dans le chapitre 8 du livre de Guyon *et al* [26]).

$$v_r = U \cos(\phi) \left( \frac{3R}{2r} - \frac{R^3}{2r^3} \right) \quad (1.22)$$

$$v_\phi = -U \sin(\phi) \left( \frac{3R}{4r} + \frac{r^3}{4r^3} \right) \quad (1.23)$$

Cette solution est uniquement valable pour les faibles nombres de Reynolds. On peut noter la lente décroissance en  $1/r$  de la vitesse de l'écoulement avec la distance à la sphère.

Nous allons maintenant nous intéresser à la perturbation à l'écoulement induite par une particule lorsque celle-ci est confinée. Nous pourrions ainsi faire ressortir les particularités de la dynamique de transport dans cette situation.

### 1.3.2 Transport dans un milieu confiné dans une direction de l'espace

Considérons une particule localisée entre 2 plaques, dans une cellule de Hele-Shaw. Cette particule est de taille supérieure à l'espacement des plaques, elle est donc bien confinée dans une direction. L'écoulement est irrotationnel,  $\text{rot}(\underline{v}) = \underline{0}$  ce qui a pour conséquence que la vitesse  $\underline{v}$  dérive d'un potentiel de vitesse  $\phi$ .

$$\underline{v} = \underline{\nabla}\phi \quad (1.24)$$

La conservation de la masse s'écrit  $\underline{\nabla} \cdot \underline{v} = 0$ . En combinant avec l'équation précédente, on obtient :

$$\underline{\nabla} \cdot \underline{v} = \underline{\nabla} \cdot (\underline{\nabla}\phi) = \nabla^2\phi = 0 \quad (1.25)$$

Notre problème est de type laplacien et nous pouvons appliquer tous les résultats connus sur ce type de problème. Un chapitre du livre "Hydrodynamique Physique" [26] est consacré aux écoulements potentiels en mécanique des fluides et le lecteur peut approfondir ce sujet à travers cette lecture. Considérons l'écoulement uniforme de vitesse  $U$  dans la direction  $x$  correspondant au cas de la figure 1.9 et dont les composantes sont d'après le paragraphe précédent (équation 1.19 avec gradient de pression constant) :

$$v_x = U = \text{cte} \quad , \quad v_y = 0 \quad (1.26)$$

Cela nous donne d'après l'équation 1.25 en coordonnées cartésiennes :

$$\frac{\partial\phi}{\partial x} = v_x = U \quad \text{et} \quad \frac{\partial\phi}{\partial y} = v_y = 0 \quad (1.27)$$

d'où :

$$\phi = Ux \quad (1.28)$$

ou en coordonnées polaires :

$$\phi = Ur \cos\theta \quad (1.29)$$

Par ailleurs, toute perturbation dans un problème laplacien peut être vue comme une somme infinie de développement multipolaire de sources et de puits. Nous allons tout

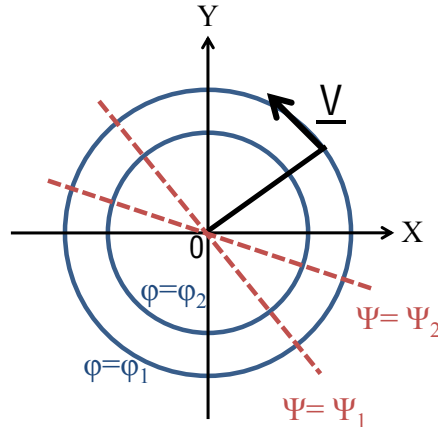


FIGURE 1.11: Lignes de courant (droites pointillées rouges  $\Psi$ ) et équipotentielles (cercles bleus  $\Phi$ ) d'un écoulement induit par une source centrée sur l'origine des axes de coordonnées.

d'abord nous intéresser à des perturbations simples de type monopole et dipôle et nous calculerons ensuite la perturbation induite par une particule dans un écoulement de type Hele-Shaw. Nous nous intéressons uniquement à des écoulements à deux dimensions.

Considérons l'écoulement induit par une source ou un puits d'écoulement  $Q$  en un point  $0$ , comme sur la figure 1.11. Le signe de  $Q$  indique s'il s'agit d'un puits ( $Q < 0$ ) ou d'une source ( $Q > 0$ ). En évaluant le flux de la vitesse à travers un cercle  $c$  de rayon  $R$  centré à l'origine (théorème de Gauss), on obtient :

$$\int_c \underline{v} \cdot \underline{n} dl = \int_0^{2\pi} r v_r d\theta = Q \quad (1.30)$$

Soit :

$$\frac{\partial \phi}{\partial r} = \frac{Q}{2\pi r} \quad (1.31)$$

C'est à dire :

$$\phi = \frac{Q}{2\pi} \text{Log} \left( \frac{r}{r_0} \right) \quad (1.32)$$

Considérons maintenant une source  $S_2$  et un puits  $S_1$  dont les débits ont la même valeur absolue  $Q$ . On a ainsi un système simple décrivant une perturbation de débit nul. Ce système est décrit sur la figure 1.12. Le potentiel de vitesse au point  $P$  par la source  $S_1$  et le puits  $S_2$  est la somme des 2 potentiels indépendants, soit :

$$\phi = \phi_{S_1} + \phi_{S_2} = \frac{Q}{2\pi} \left( \log \frac{|\underline{r} - \underline{r}_2|}{r_0} - \log \frac{|\underline{r} - \underline{r}_1|}{r_0} \right) \quad (1.33)$$

On peut alors développer le logarithme au voisinage de  $r$  :

$$\phi \sim \frac{Q}{2\pi} \frac{1}{r} (|\underline{r} - \underline{r}_2| - |\underline{r} - \underline{r}_1|) \quad (1.34)$$

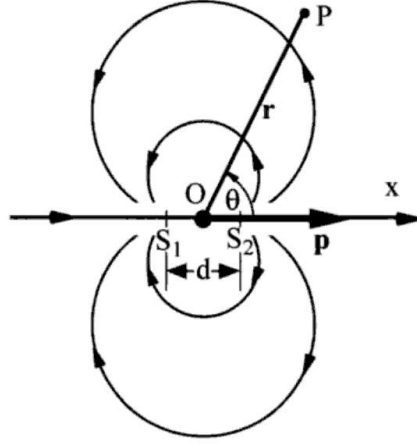


FIGURE 1.12: Écoulement à deux dimensions créé par l'ensemble d'un puits  $S_1$  et d'une source  $S_2$ , de même débit  $Q$ . Lorsqu'on fait tendre leur distance  $d$  vers 0, en maintenant le produit  $Qd$  constant, on obtient l'écoulement créé par un dipôle de moment  $p = Qd$ . Les lignes noires représentent les équipotentiels.

Soit encore :

$$\phi = -\frac{p \cos \theta}{2\pi r} \quad (1.35)$$

Avec  $p = QS_1S_2$ .

Considérons maintenant un champ uniforme de vitesse  $U$  perturbé par la présence d'un cylindre circulaire de rayon  $R$  et d'axe perpendiculaire à la vitesse, correspondant à la situation de la cellule de Hele-Shaw. Considérons, en coordonnées polaires à deux dimensions, le potentiel  $\phi$  des vitesses résultant de la superposition des potentiels correspondant à un écoulement uniforme de vitesse  $U$  orienté dans la direction  $\theta = 0$  et un dipôle orienté dans la même direction. Cette approche est intuitive dans le sens où le dipôle est la solution la plus simple qui n'est pas source de fluide. De plus, si cette équation respecte les conditions aux limites, on sait qu'elle sera unique car solution d'un problème laplacien. Si nous n'arrivons pas à adapter les conditions limites, nous devons chercher des termes d'ordres supérieurs dans le développement multipolaire.

$$\phi = \phi_{\text{écoulement uniforme}} + \phi_{\text{dipôle}} = Ur \cos \theta - \frac{p \cos \theta}{2\pi r} \quad (1.36)$$

De l'expression 1.36, on déduit alors les composantes de la vitesse :

$$\begin{cases} v_r = \frac{\partial \phi}{\partial r} = \left( U + \frac{p}{2\pi r^2} \right) \cos \theta \\ v_\theta = \frac{1}{r} \frac{\partial \phi}{\partial \theta} = -\left( U - \frac{p}{2\pi r^2} \right) \sin \theta \end{cases} \quad (1.37)$$

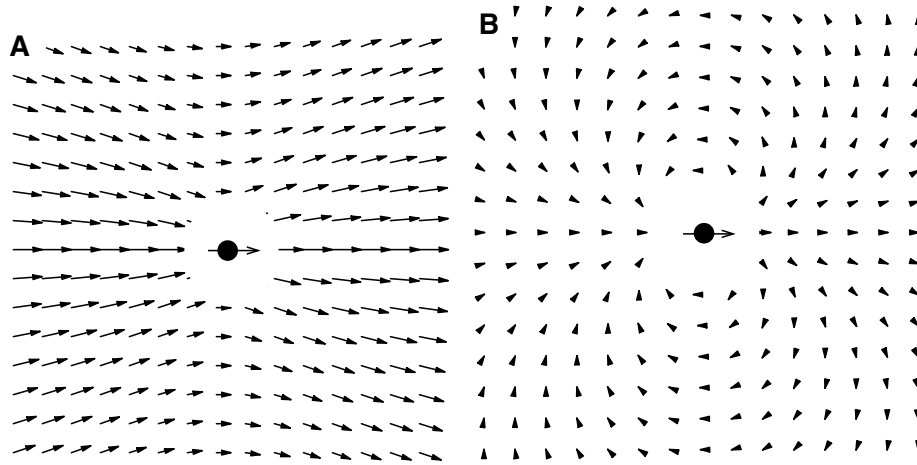


FIGURE 1.13: Champ de vitesse d'une particule se déplaçant de la gauche vers la droite dans : a) Un liquide non confiné. b) Un liquide confiné entre 2 plaques. Notez la forme dipolaire de ce champ dans le cas du liquide confiné. Extrait de [31].

Regardons s'il existe un certain  $p$  qui vérifie les conditions aux limites :

$$\begin{cases} v_{\infty} = U \\ v_r(r = R) = 0 \quad (\text{impénétrabilité du liquide dans la particule}) \end{cases} \quad (1.38)$$

La première condition est identiquement vérifiée car le champ de vitesse créé par le dipôle décroît en  $1/r^2$  avec la distance. La seconde condition entraîne :

$$-\frac{p}{2\pi R^2} = U \quad (1.39)$$

On en déduit :

$$\phi = Ur \cos \theta \left(1 - \frac{R^2}{r^2}\right) \quad (1.40)$$

L'unicité de la solution nous permet d'affirmer qu'une particule placée dans une cellule de Hele-Shaw perturbe l'écoulement de manière **dipolaire** comme cela s'est vérifié expérimentalement ([23], [30]).

Pour se faire une image claire de l'influence du confinement, on va comparer cette perturbation à celle induite par une particule dans un écoulement libre à trois dimensions à bas nombre de Reynolds. Cela a été présenté au paragraphe précédent et les deux perturbations sont reproduites sur la figure 1.13. On comprend alors que la physique associée va être complètement différente. La dynamique de transport pour des particules confinées va donc avoir ses particularités. En effet, le confinement impose une vitesse nulle aux parois

transverses à l'écoulement. Cela crée une correction négative transverse qui est représentée sur cette figure. L'un des points remarquables de cette comparaison est la différence de décroissance du potentiel de vitesse en fonction de la distance  $r$  à la sphère. Dans cet écoulement potentiel, la décroissance est en  $1/r^2$  tandis qu'elle est en  $1/r$  pour le cas d'une sphère non confinée. La recirculation va de fait être plus localisée, et les interactions hydrodynamiques seront différentes.

Pour comprendre quels sont les changements lorsque l'on confine dans une deuxième direction, je vais me baser sur un travail de l'équipe de Roy Bar-Ziv [23].

Cette étude a été menée sur un cristal 1D de gouttes dans une cellule de Hele-Shaw. Sur la figure 1.14 est reproduit un cliché de leur expérience qui consiste à laisser s'écouler dans une cellule de Hele-Shaw une chaîne de gouttes d'eau contraintes en hauteur ( $R_{\text{goutte}} = 2 \times h_{\text{circuit}}$ ), dans un canal dont la hauteur est beaucoup plus faible que les autres longueurs. Ils ont montré expérimentalement et théoriquement la présence de modes collectifs vibrationnels transverses, équivalent à des phonons acoustiques, dans ce cristal microfluidique 1D. La puissance spectrale des fluctuations longitudinales de densité qu'ils ont obtenu à partir de leurs données expérimentales est reproduite sur la figure 1.15. Ils ont ainsi expliqué la stabilité d'un train de gouttes avec des interdistances égales, ce qui avait été expérimentalement vu notamment par Thorsen *et al* en 2001, figure 1.6.

Ce travail a été poursuivi en regardant comment les interactions entre particules sont écrantées lorsque que l'on diminue la deuxième dimension [24]. Cela revient à confiner les particules dans une deuxième dimension. Les auteurs ont calculé en 2006 ([24]) la décroissance de la portée des interactions en fonctions de la largeur  $W$  (figure 1.14 pour plus de clarté) :

$$\partial_x \phi \sim (u_{\text{fluide}}^\infty - u_{\text{goutte}}) \begin{cases} 2R/W \times \tan(\pi R/W) \exp(-2\pi x/W) & x \gg W \\ R^2/x^2 & x \ll W \end{cases} \quad (1.41)$$

où  $\phi$  représente le potentiel de vitesse,  $u_{\text{fluide}}^\infty$  est la vitesse du fluide et  $u_{\text{goutte}}$  la vitesse

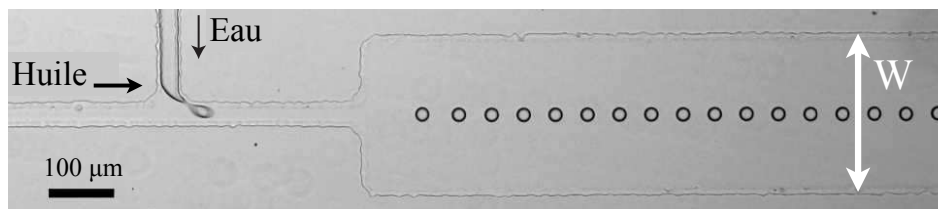


FIGURE 1.14: Dispositif microfluidique générant un cristal 1D en écoulement de gouttes d'eau dans l'huile avec tensioactifs. La hauteur du canal est de  $10 \mu m$ . La largeur est de  $35 \mu m$  à la jonction en T et de  $250 \mu m$  dans le canal de sortie. Photo tiré de [23]



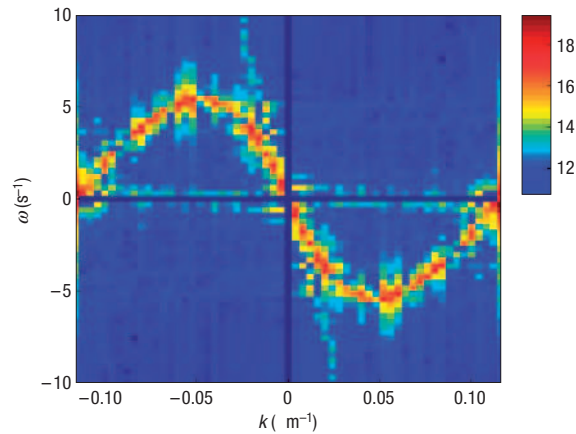


FIGURE 1.15: Logarithme de la densité spectrale de puissance des ondes longitudinales en fonction du vecteur d'onde et de la fréquence ( $k, \omega$ ). Les valeurs négatives de  $\omega$  reflètent la brisure de symétrie. Le pas du cristal était de  $27 \mu\text{m}$  et le rayon des gouttes  $10 \mu\text{m}$ . La vitesse des gouttes est de  $360 \mu\text{m}$  et la vitesse du fluide de  $1730 \mu\text{ms}^{-1}$ .

d'une goutte seule. Ils ont mis en évidence que ces interactions décroissent de façon exponentielle avec la largeur du canal, équation 1.41. Ainsi des gouttes s'écoulant dans des tubes de taille égale au diamètre des bulles, vu à travers ce point de vue, ne semblent plus pouvoir interagir entre elles. Nous allons nous attarder un peu sur ce cas et voir si effectivement, ces interactions sont réduites à néant lorsque des particules sont confinées dans deux directions de l'espace.

### 1.3.3 Transport de particules confinées dans deux directions de l'espace

#### 1.3.3.1 Transport de particules dans des tubes

Je vais tout d'abord résumer les connaissances actuelles sur les modifications induites par la présence de particules dans des tubes. On se place évidemment dans le cas où le rayon de la goutte est comparable à celui des canaux ; il ne s'agit pas de simples traceurs de fluide, les particules bouchent localement le canal et sont donc confinées dans deux directions.

En 1961, Bretherthon publie un article sur l'ascension de bulles dans des capillaires cylindriques [32]. Cet article établit clairement une loi d'échelle entre la vitesse de la bulle et le nombre capillaire  $U \propto (\frac{\eta U}{\gamma})^{2/3} = Ca^{2/3}$ , où  $\eta$  représente la viscosité du liquide,  $U$  la vitesse du fluide et  $\gamma$  la tension de surface. Les expériences ainsi que les calculs ont ensuite été largement repris et affinés, notamment en 2004 par Hodges *et al* [33]. Ce qui guide le calcul pour obtenir ce résultat est la présence d'une très fine couche de liquide entre la bulle et

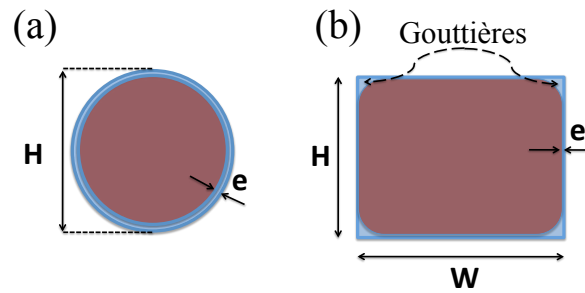


FIGURE 1.16: Vue en coupe d'un tube contenant une phase continue (en bleu) et une phase dispersée (en rouge). (a) Tube cylindrique. Présence d'un film d'épaisseur  $e$ . (b) Tube de section carré de hauteur  $H$  et de largeur  $W$ . Présence de gouttières où la phase continue de liquide est plus abondante.

les parois du tube, d'épaisseur  $e$  sur la figure 1.16a. On comprend alors aisément que cette approche n'est plus rigoureusement valable pour des canaux de section carré avec la présence de gouttières, comme cela se voit sur la figure 1.16b.

Une étude expérimentale et théorique a été menée par l'équipe de Whitesides [34] sur la variation de pression à l'intérieur d'un canal carré due à la présence d'une bulle. Ils ont montré que cela entraînait une chute de pression, que celle-ci se localisait aux extrémités de la goutte et qu'elle dépendait de divers paramètres. Ils en déduisent que cette chute de pression due à la présence de la particule dérive principalement de trois facteurs :

- la fine couche de liquide entre la goutte et le canal.
- la présence des gouttières.
- la forme courbée de l'avant et de l'arrière de la goutte.

La figure 1.17 indique quel est d'après Whitesides le champ de pression dans un canal contenant une bulle et dans un canal n'en contenant pas. Ces deux canaux sont soumis au même gradient de pression. On voit que la présence d'une particule provoque une chute de pression au niveau de la particule. Cela a pour principale conséquence de créer des différentiels de pression plus faibles en amont et en aval de la particule. Ainsi, vu qu'il existe une relation linéaire entre débit et gradient de pression, on peut déduire de la courbe 1.17b que la vitesse du fluide est plus faible dans le canal avec la particule. Or on sait empiriquement ([35] et [36]) qu'une goutte, en cas de jonction entre deux canaux va toujours choisir le canal dans lequel la vitesse est la plus rapide. Une goutte arrivant à cette jonction, alors que l'une des branches est déjà occupée par une particule, va nécessairement choisir la branche inoccupée. De cette manière, la goutte arrivant à la jonction interagit avec celle déjà présente dans une branche. Bien que la perturbation soit locale au niveau du champ de pression, on voit que cela peut avoir une conséquence à plus longue portée.

Nous allons voir à la prochaine section quelle est l'implication de ce phénomène sur le transport de particules en milieu confiné.

### 1.3.3.2 Interactions entre particules malgré un confinement dans deux dimensions

Je vais vous présenter ici d'autres travaux qui montrent que malgré un confinement dans deux directions, les particules peuvent interagir entre elles.

Dans l'expérience présentée sur la figure 1.18a, l'équipe du LOF de Bordeaux a injecté continuellement un train de gouttes à une jonction en faisant varier la distance interparticule,  $\lambda$ , [37]. Ils regardent alors la répartition des gouttes entre les deux bras de la jonction. Il se sont aperçus qu'ils obtenaient une répartition déterminée uniquement par cette distance  $\lambda$  fixée initialement. Ils concluent ainsi que les interactions guident le trafic dans cette situation ; les particules peuvent interagir car les interdistances dans les deux branches sont fixes et sont uniquement déterminées par l'interdistance initiale  $\lambda$ .

Un autre exemple tend à nous faire penser de la même manière ; il s'agit du travail proposé en 2006 par Cristobal *et al* [38]. Dans cette expérience, ils font continuellement arriver des gouttes à des jonctions. Les auteurs ont connecté leurs différents canaux *via* des dériviatives (voir figure 1.18b). Ils arrivent par ce biais à parfaitement répartir leurs gouttes dans les différents canaux, ce qui ne serait pas le cas sans dérivation. Ils montrent ainsi que le trafic de gouttes dépend de la présence ou non de particules dans les canaux. Les interactions entre particules sont donc bien responsables de ce mode de transport car les gouttes peuvent interagir grâce aux dériviatives.

Les premières interprétations claires de ce type d'expérience, avec des particules devant faire un choix entre deux canaux, ont été données par différents groupes en 2005-2006 ([37]

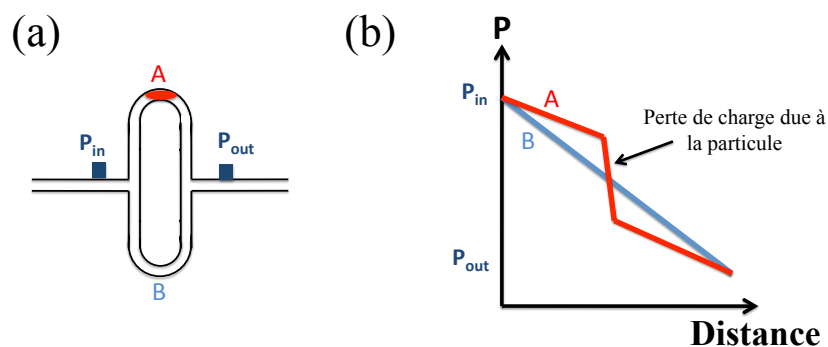


FIGURE 1.17: Description de la perte de charge induite par la présence d'une particule, explicitée dans [34]. a) Schéma de principe de l'expérience. b) Graphe représentant qualitativement le champ de pression le long des 2 liens de la boucle.

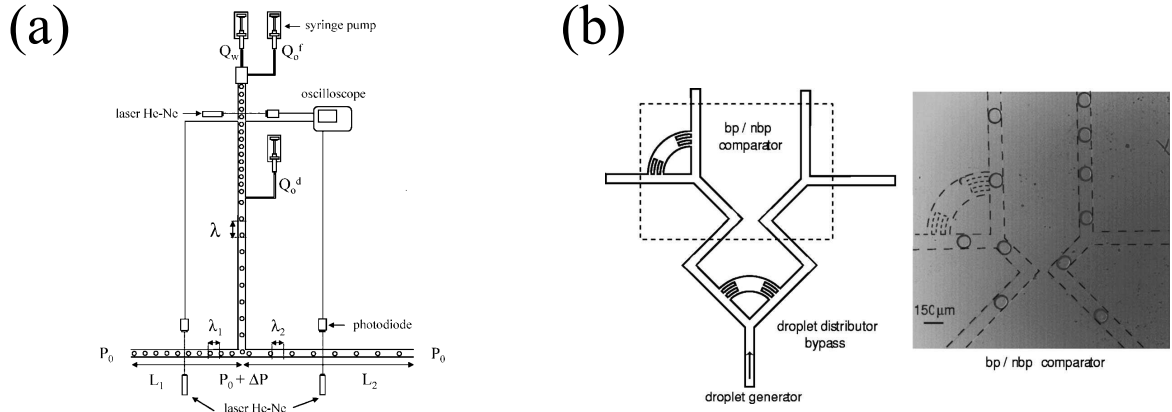


FIGURE 1.18: Expériences mettant en avant la présence d'interactions entre particules lorsqu'elles sont confinées dans deux directions. a) Schéma de l'expérience, extrait de [37]. Des gouttes séparées d'une distance  $\lambda$  choisissent une des jonctions en fonction du choix des autres. b) Schéma de l'expérience, tiré de [38]. Des gouttes arrivent à une jonction à laquelle est ajoutée une dérivation. Par ce biais les gouttes choisissent alternativement l'une ou l'autre branche.

et [35]) puis clairement explicitées dans l'article de Schindler *et al* en 2008 [39]. Ils ont tiré parti d'une analogie entre les écoulements de Stokes et l'électrocinétique. Ils modélisent à la fois la phase continue et la phase dispersée indépendamment du type de réseau. Pour cela, ils écrivent une équation similaire à l'équation de Kirchhoff à l'intersection de la jonction :

$$\sum_{\text{jonction}} Q_{i \in \text{jonction}} = 0 \quad (1.42)$$

Le débit sur une branche  $Q_i$ , est quant à lui directement relié à la différence de pression,  $\Delta P_i$ , par la résistance hydrodynamique du canal  $R_i$ , comme nous l'avons vu au paragraphe précédent :

$$\Delta P_i = R_i Q_i \quad (1.43)$$

Et toute l'intelligence de l'approche vient du fait d'allouer une certaine résistance hydrodynamique constante,  $R_d$ , à une particule :

$$\mathbf{R}_i = \mathbf{R}_0 + \mathbf{n} \times \mathbf{R}_d \quad (1.44)$$

$R_0$  correspond à la résistance hydrodynamique du canal à vide (voir section précédente), uniquement dépendant de la géométrie du canal et des liquides en présence;  $n$  correspond au nombre de particules dans le canal. Comme nous l'avons vu précédemment, la résistance hydrodynamique correspondant à une particule,  $R_d$ , va dépendre du nombre capillaire ou de la présence ou non de tensioactifs. Mais elle est constante si ces paramètres sont constants. La résolution de ce problème par cette description est extrêmement simplifiée.

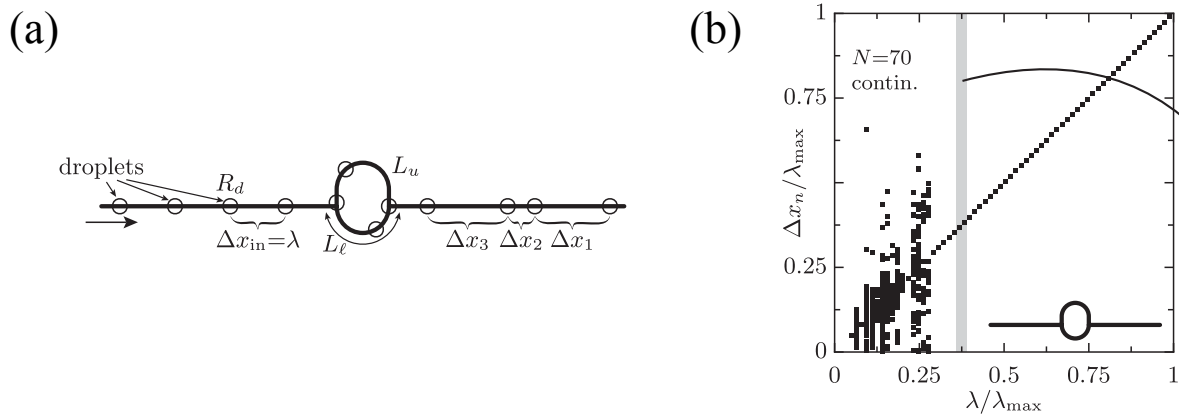


FIGURE 1.19: Expérience numérique tiré de l'article [39]. a) Description des paramètres de la simulation numérique. Les particules de résistance  $R_d$  tel que  $R_d/\bar{R} = 1.5$  ( $\bar{R}$  représente la résistance moyenne de boucles), séparées d'une distance  $\lambda$ , passent au travers d'une boucle de tailles  $L_l$  et  $L_u$  tel que  $L_u/L_l = 1.112$  et ressortent séparées d'une distance  $\Delta x$ . b) Interdistances entre 70 particules après passage de 2 boucles en fonction de l'interdistance initiale  $\lambda$  entre ces 70 particules.

Ce modèle a été efficacement mis à profit pour comprendre des modèles physiques complexes. Il a permis de donner une explication de l'expérience de Whitesides [16] sur le codage/décodage d'information, décrit à la partie 1.1, comme cela est représenté sur la figure 1.19. Sur cette figure, ils ont représenté l'interdistance initiale en fonction de l'interdistance après passage dans les boucles. Ainsi le système est réversible si les points se retrouvent sur la diagonale. On s'aperçoit qu'il y a une plage de réversibilité mais aussi une plage où la dynamique est plus complexe.

L'équipe de Panizza à Rennes a su aussi parfaitement comprendre la dynamique de particules entrant dans une boucle grâce à ce principe ([40] et [41]). Dans leur plus récent article [41], ils ont réussi à dériver une expression **analytique** pour décrire la répartition de particules en sortie d'une boucle comme dans l'expérience décrite sur la figure 1.19a. Des analyses similaires ont aussi été menées dans le groupe polonais de Garstecki ([42] et [43]) mais aussi en Iran [44]. Cela a permis à chaque fois permis une interprétation quantitative de leurs résultats expérimentaux.

Ce modèle a aussi des applications pratiques. Choi *et al* [45] s'est notamment servi d'une telle approche pour caractériser la résistance hydrodynamique équivalente de globules rouges. Il espère ainsi donner des caractéristiques pour des globules rouges pathologiques et cela pourrait être un nouveau moyen de diagnostic. Labrot [46] et Vanapelli [47] se sont servis quant à eux de cette approche pour caractériser la résistance hydrodynamique d'une goutte et mesurer ses variations en fonction de la viscosité des liquides ou du nombre ca-

pillaire par exemple.

Je vous ai montré dans ce premier chapitre que le transport de particules en milieu confiné admet des particularités. Une des solutions simples pour confiner des particules est de recourir aux outils microfluidiques.

Avant de décrire proprement comment nous sommes arrivés à faire ces expériences et quels sont les outils microfluidiques que nous avons dû mettre en place, je vais à travers un court chapitre décrire notre démarche expérimentale.

## Vue d'ensemble

Dans ce court chapitre, je vais décrire de quelle manière nous avons abordé ce problème. Ensuite, à partir de résultats brièvement exploités, je vais faire ressortir certaines questions que nos expériences ont soulevées.

Les chapitres 4, 5 et 6 répondront précisément à ces différentes questions, après avoir détaillé dans le chapitre 3 les techniques expérimentales nécessaires à ces études.

### 2.1 Positionnement du problème

Nous cherchons à comprendre quelle est la dynamique de particules advectées dans des réseaux microfluidiques. Le type de réseau que nous étudions peut être schématiquement représenté par la figure 2.1. Les points rouges représentent les particules qui se déplacent sur ce réseau. D'après ce que nous avons vu avant, nous pouvons écrire la résistance hydrodynamique pour chaque branche du réseau :

$$R_i = R_0 + n_i \times R_d \quad (2.1)$$

où  $R_0$  représente la résistance du lien à vide,  $n_i$  le nombre de particules présentes sur le lien et  $R_d$  la résistance associée à une particule. La présence d'une particule va donc modifier la résistance du réseau où elle se situe. Mais cela va, de fait, modifier la valeur des pressions aux bornes du lien où elle s'écoule et aussi par conséquent la pression à tous les noeuds du réseau. Ainsi la dynamique de ce problème devient complexe car la vitesse de chaque particule sur le réseau va dépendre de la position des autres particules dans l'ensemble. Bien que la présence d'une particule soit locale, la perturbation à l'écoulement est non

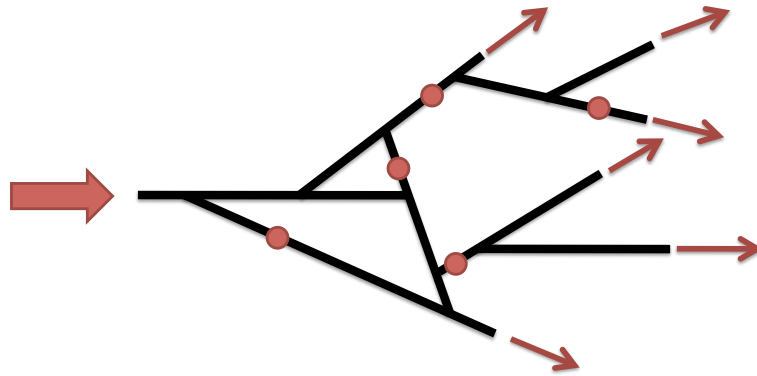


FIGURE 2.1: Schéma d'un réseau fluide. Les points rouges désignent les particules et les flèches rouges désignent l'injection et la sortie de fluide.

locale, répartie sur l'ensemble du réseau. L'amplitude de la perturbation décroît avec la distance à la particule.

D'une manière plus générale, le fait qu'une particule se déplaçant sur un réseau modifie localement la résistance du réseau est intéressante au-delà de notre système fluide. Cela pose la question de comment évolue temporellement un agent sur un réseau qui par sa présence modifie les propriétés de transport du réseau. En d'autres termes cela nous permet d'étudier la **dynamique de transport sur un réseau évolutif**, ce qui a une portée beaucoup plus vaste. On va pouvoir relier nos travaux aux trafics de voiture ou de piétons qui ont des caractéristiques communes, comme cela se voit sur la figure 2.2.

(a)



(b)



FIGURE 2.2: Exemple sociétal de transport sur un milieu évolutif. a) Evolution non anarchique d'un noeud routier. b) Foule en déplacement dans une rue.



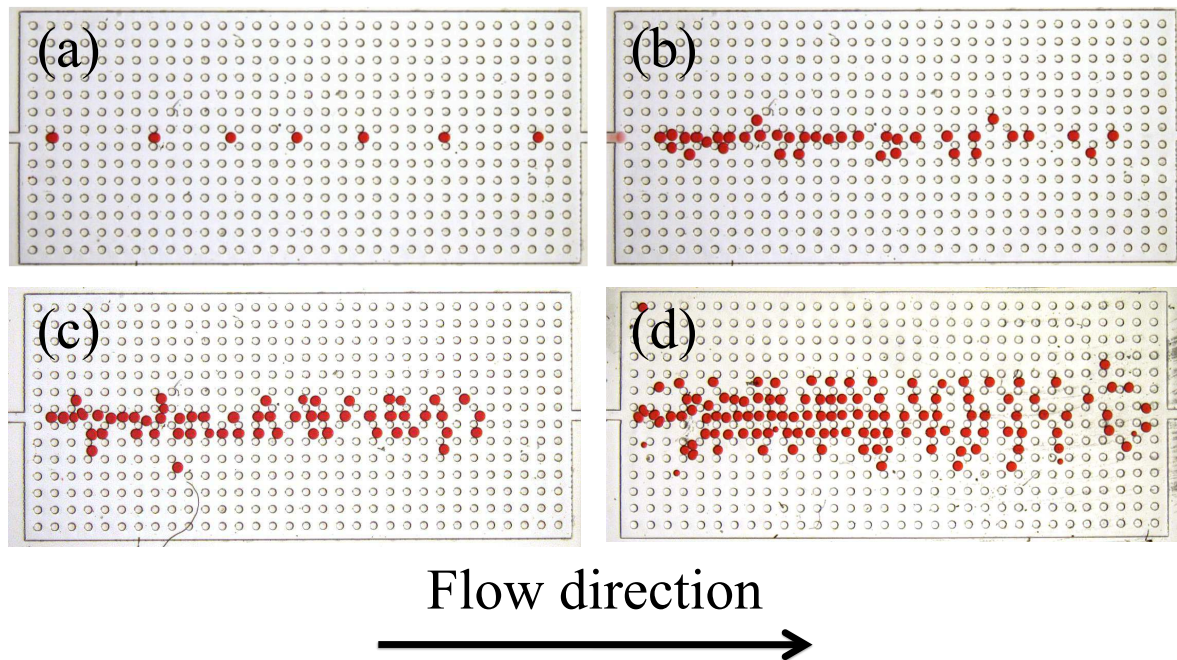


FIGURE 2.3: Gouttes d'eau colorée dans l'hexadecane + tensioactifs s'écoulant dans un réseau microfluidique. Les différents clichés correspondent à différentes valeurs de courant en particules. a) 0.4 Hz. b) 0.8 Hz. c) 1.2 Hz. d) 3 Hz.

Je vais maintenant décrire une expérience microfluidique que nous avons faite pour nous placer dans ce cadre-là.

## 2.2 Une expérience modèle

Nous avons fait le choix de nous intéresser à l'écoulement d'émulsions diluées à travers des réseaux d'obstacles microfluidiques. Une expérience typique est représentée sur la figure 2.3. Des gouttes s'écoulent dans ce réseau de la gauche vers la droite. Il existe un chemin privilégié reliant l'entrée à la sortie. Entre chaque cliché, on a augmenté le taux d'injection en particules (ou courant  $j$ ), qui est le paramètre de contrôle de cette expérience, ce qui modifie le taux d'occupation du réseau. Ainsi les quatre photos de la figure 2.3 représentent le même système pour quatre courants d'injection différents.

Un raffinement important a été apporté aux expériences pour garantir que le taux d'injection et la taille des particules soient constant sur toute la durée de l'expérience (cette innovation microfluidique sera explicitée dans le chapitre 3). De plus, le nombre capillaire

est quant à lui gardé constant tout au long des expériences et la faible valeur du nombre de Reynolds, de l'ordre de  $10^{-3}$ , nous assure que l'inertie ne joue pas un rôle significatif dans ces expériences.

Cette expérience, qui traite d'une géométrie simple, a donc toutes les caractéristiques pour étudier le transport sur un réseau évolutif.

## 2.3 Questions soulevées

### 2.3.1 Invasion du réseau

Pour se faire une première idée, du comportement du système, regardons plus en détail les premières images de la figure 2.3. Sur le premier cliché, les gouttes sont toutes transportées dans le chemin préférentiel et semblent équitablement réparties le long de la ligne centrale. Pour la deuxième image, des chemins ne correspondant pas au chemin préférentiel ont été envahis. On a donc dépassé le courant correspondant à l'envahissement des ces chemins,  $j^*$ . Le courant d'injection est deux fois plus élevé dans le deuxième cas que dans le premier et pourtant, le nombre de gouttes présentes dans le réseau microfluidique est lui quatre fois plus important.

Plus quantitativement, on représente sur la figure 2.4, le nombre de gouttes présentes dans le canal central (carrés rouges) et dans l'ensemble du réseau (ronds bleus) en fonction du courant imposé, moyenné sur l'ensemble de la durée de l'expérience. Premièrement on voit qu'il existe une relation non linéaire entre le courant et le nombre de particules, ce qui est le signe d'interactions hydrodynamiques entre particules. Elles ne sont pas simplement advectées par le fluide. Deuxièmement, on note qu'au moment où les canaux autres que le canal central sont envahis (le moment où les ronds bleus, correspondant au nombre total de gouttes, se séparent des carrés rouges, correspondant au nombre de gouttes dans le canal central), la forme de la relation entre courant et nombre de particules change énormément. La dynamique doit donc être différente pour des courants supérieurs à ce courant d'invasion,  $j^*$ .

On peut alors se demander : **Quels mécanismes permettent de comprendre cette non linéarité pour l'occupation du réseau en fonction du courant d'injection et quels sont les éléments pour expliquer ce changement de dynamique ?**

Nous verrons cela à travers les chapitres 4 et 6.

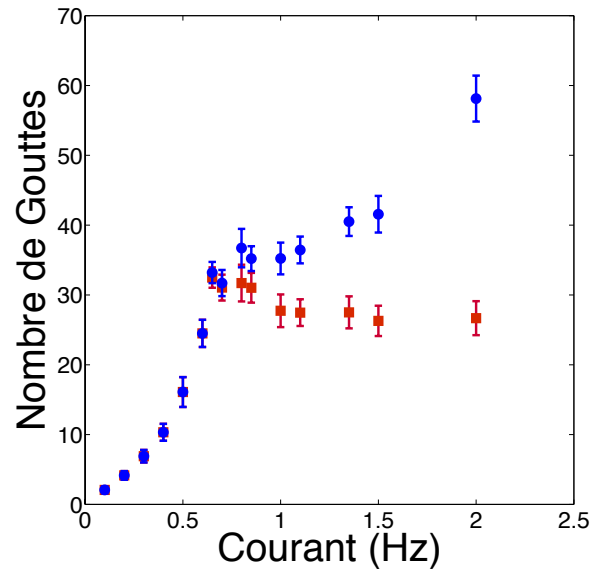


FIGURE 2.4: Valeurs moyennées sur l'ensemble des expériences. Ronds bleus : nombre total de gouttes présentes dans le circuit en fonction du courant en particule. Carrés rouges : nombre total de gouttes présentes dans le canal central uniquement en fonction du courant en particule.

### 2.3.2 Domaine de stabilité d'un cristal 1D de particules

On peut à partir des expériences précédentes définir une densité 1D sur la ligne centrale. Cette densité est normalisée par la valeur de la densité d'empilement compact. Une densité de 1 signifie donc que les gouttes sont en contact.

La figure 2.4 nous montre que l'envahissement du réseau a lieu lorsqu'il y a environ 35 gouttes dans le canal central, ce qui correspond avec la définition précédente à une densité de 0.7, bien inférieure à 1. On peut alors raisonnablement se demander pourquoi, on n'arrive pas à atteindre de densités 1D supérieures avant d'envahir le réseau.

Cela nous amène à nous poser la question suivante : **un cristal 1D de particules peut-il s'écouler de manière stationnaire quelque soit sa densité ?**

Cette question sur l'existence de solutions stationnaires sera traitée dans le chapitre 4.

De la réponse à cette question résultera une autre interrogation : **quel est le domaine de stabilité des ces solutions stationnaires d'un cristal 1D de particules en écoulement ?**

Cela est exactement l'objet du chapitre 5.

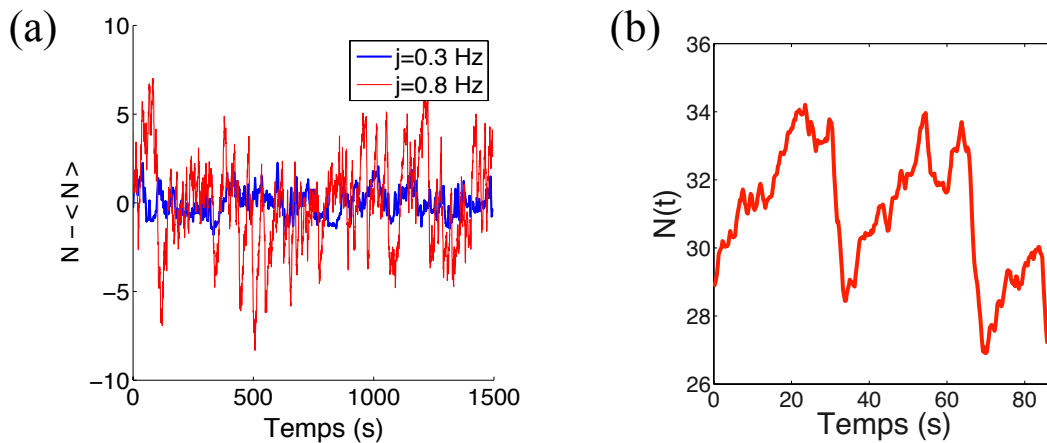


FIGURE 2.5: a) Nombre de gouttes présentes dans le canal en fonction du temps moins la valeur moyenne. Bleu :  $j = 0.3 \text{ Hz} < j^*$ . Rouge :  $j = 0.8 \text{ Hz} > j^*$ . b) Nombre de gouttes en fonction du temps pour  $j = 0.8 \text{ Hz}$  sur une zone temporelle plus restreinte.

### 2.3.3 Une dynamique intermittente

Et enfin, on peut simplement s'intéresser, non pas à la densité et aux courants moyens, mais aux fluctuations autour des valeurs moyennes. On représente sur la figure 2.5a le nombre de gouttes dans le canal central en fonction du temps pour deux courants en particules différents, l'un inférieur au courant d'invasion et l'autre supérieur. Le signal pour le faible courant (en bleu), reste proche de la valeur moyenne ; la variabilité sur la taille des particules et les fluctuations de débit permettent d'expliquer les variations autour de la valeur moyenne. La solution est expérimentalement stationnaire.

Cela n'est plus le cas pour le courant supérieur à  $j^*$ , les fluctuations sont très importantes. La solution n'est plus stationnaire. On représente sur la figure 2.5b, le signal au dessus de  $j^*$  sur une plus petite durée. Deux échelles de temps (une courte et une longue) émergent de ce signal intermittent. On observe aussi de fortes chutes dans l'amplitude du signal similaires à des phénomènes d'avalanches.

On peut alors se demander : **quelle est l'origine de cette dynamique intermittente et peut-on la caractériser ?**

Ce point précis sera discuté dans le chapitre 6 à travers un étude expérimentale et numérique.

Les chapitres 4, 5 et 6 vont donc tous apporter des réponses à ces questions naturelles que l'on se pose suite à cette expérience d'écoulement de particules confinées dans un réseau microfluidique. Une approche expérimentale, numérique et théorique sera développée

pour apporter des réponses convenables. Nous chercherons à toujours à mettre nos résultats au regard d'autres domaines de la physique.

Avant de répondre à ces questions, je vais décrire quels sont les outils microfluidiques que nous avons dû mettre en place pour réaliser des expériences modèles quantitatives.



## Techniques expérimentales

Mon travail durant ces trois dernières années s'est énormément reposé sur les récentes avancées en microfluidique. J'ai toujours essayé d'y apporter ma contribution et de profiter des dernières technologies. Je vais présenter maintenant une revue brève mais actuelle de certaines techniques expérimentales qui m'ont été utiles, tout en m'attardant sur les nouveaux outils que j'ai développés et qui m'ont permis de faire ma recherche.

### 3.1 Techniques de gouttes en microfluidique

Pour une étude précise, il est important d'avoir une maîtrise sur divers paramètres de l'expérience. C'est la fabrication des particules dans ces expériences qui requiert le plus d'importance. En effet, nous avons vu dans le premier chapitre que la perturbation induite par une particule dépend de sa taille et de sa forme. Nous allons donc devoir fabriquer un système qui génère des particules de même forme et de même taille sur toute la durée de l'expérience. La première idée a été de fabriquer des gouttes *in situ* via les techniques connues en microfluidique.

#### 3.1.1 Contexte

La microfluidique a connu récemment un essor extraordinaire car elle est l'outil idéal pour la fabrication de laboratoires sur puce qui visent à miniaturiser les dispositifs d'analyse chimique et biologique (lire [4] notamment). Son essor a été conditionné par la possibilité technologique d'adapter les techniques de microfabrication destinées originellement à

l'électronique à des applications fluidiques. Les techniques permettant de reproduire rapidement et simplement un motif résolu au micron, dites de lithographie douce, ont permis à la microfluidique de s'étendre à des laboratoires ne bénéficiant pas nécessairement d'équipements de fabrication sophistiqués. Leur essor date de 1998 et de la publication par Xia *et al* de leur article [48]. L'annexe A, donnée en fin de chapitre, décrit les rudiments de cette technique.

La fabrication de gouttes en microfluidique a permis l'essor de nombreuses applications. Beaucoup de travail sur la production de gouttes a été fait à partir de 2001, correspondant au démarrage de cette activité par la publication de l'article de Thorsen *et al* [17]. L'annexe B en fin de chapitre décrit les techniques classiques de production de gouttes en microfluidique.

Je vais dans cette section uniquement me concentrer sur mon apport à ces techniques, laissant le lecteur peu familier des gouttes en microfluidique lire plus en détail l'annexe B.

### 3.1.2 Inconvénients des systèmes usuels de fabrication de gouttes

La communauté microfluidique est maintenant capable de fabriquer des puces microfluidiques particulièrement performantes en ce qui concerne la génération de gouttes à haute fréquence. On peut citer à titre d'exemple le travail de Nisisako *et al* [49] qui décrit la production de gouttes quasi monodisperses de taille moyenne égale à  $93 \mu\text{m}$  ( $\pm 1.3\%$ ) à une fréquence supérieure à la centaine de kHz. La fabrication de particules monodisperses n'est plus un problème mais plutôt un atout de la microfluidique.

Cela est particulièrement intéressant pour notre étude sur la dynamique de transport pour laquelle la perturbation locale induite par une particule dépend de sa taille. Le caractère fortement monodisperse est un point fort de ce point de vue là. Mais nous avons aussi un autre critère pour nos expériences qui est la nécessité que la taille des particules reste constante quelque soit le nombre de gouttes injectées par seconde dans le système, c'est-à-dire, le courant en particule. On voit schématiquement sur le graphe 3.1 extrait de [50] que la taille des particules  $L$  va dépendre des débits en phase continue et en phase dispersée. Ainsi il existe une dépendance entre la taille des particules  $L$ , la distance interparticule,  $\lambda$ , et la vitesse de la phase continue,  $v$ .

$$L = f(\lambda, v) \quad (3.1)$$

Cette dépendance est un réel problème pour faire des expériences quantitatives sur la dynamique de transport. Mais il existe quand même une partie de la courbe pour laquelle cette dépendance est moins forte. Nous avons donc fabriquer un "système à dilueur" qui permet de travailler pour des courants en particule relativement proches. Ce système représenté sur la figure 3.2 a été inspiré de différents travaux, notamment d'un travail effectué entre



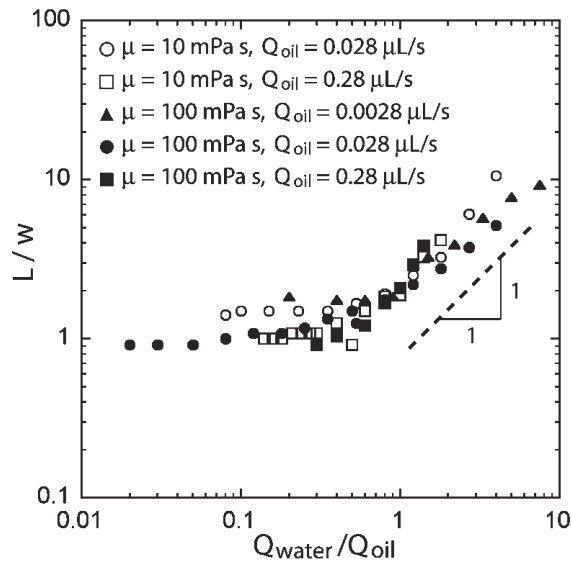


FIGURE 3.1: Dépendance de la taille d'une particule formée à une jonction en T au rapport des débits en phase continue et phase dispersée. Extrait de [50].

des équipes de Rennes et Bordeaux [51]. Ce système est constitué d'une jonction "flow-focusing" classique (voir Annexe B) à laquelle on a ajouté un module de dilution. Les deux entrées en phase continue sont contrôlées indépendamment. On peut ainsi modifier la distance entre particules,  $\lambda$ , en impactant moins sur leur taille,  $L$ .

Mais ce système nécessite une mesure du débit total car la vitesse de la phase continue entre deux expériences va être différente. Il a par contre l'avantage d'être rapide quant au changement de courant d'injection en particules ; le système répond quasi immédiatement au changement de valeur de consigne. Ce système va être particulièrement efficace pour étudier la propagation locale d'une perturbation dans un cristal unidimensionnel de gouttes. Il suffit, en effet, de diminuer pendant un temps très court le débit du dilueur pour augmenter fortement et localement la densité en particule. Cette étude sera développée dans le

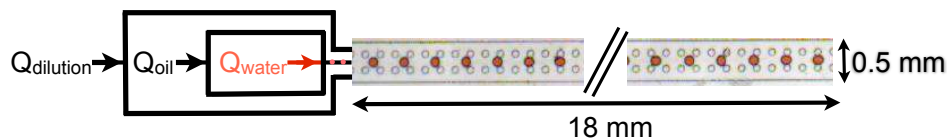


FIGURE 3.2: Système microfluidique à dilueur. Un module de dilution indépendant de la formation des gouttes (*via* le flow-focusing) permet un ajustement rapide et précis de la densité linéique. Les gouttes colorées sont advectées dans de l'hexadécane + span 80 (3 % en masse).

chapitre 5.

Mais pour une étude dans laquelle le courant en particule varie fortement, nous avons besoin de développer de nouveaux outils microfluidiques pour décorrélérer la taille des particules et leur distance. Cela est techniquement possible grâce à la fabrication de vannes microfluidiques qui vont permettre d'injecter dans un système des gouttes de tailles définies indépendamment de la fréquence d'injection. Cet outil a été mis au point au laboratoire mais est en réalité un aboutissement de longue recherche en microfluidique sur le contrôle des débits. L'annexe C décrit plus précisément le travail de la communauté microfluidique sur le contrôle d'alimentation en fluide grâce à des vannes microfluidiques.

### 3.1.3 Vannes microfluidiques

Les vannes mises au point dans le groupe de Stephan Quake [52] ainsi que ses raffinements plus récents ([53], [54]) permettent un contrôle efficace des débits en liquide. L'annexe C décrit le fonctionnement de ces vannes mais aussi leurs caractéristiques principales.

Or une telle technique a deux défauts principaux. Le premier est qu'elle n'a pas pour but de fabriquer des gouttes, juste de générer des ouvertures ou fermeture d'alimentation en liquide. Il a donc fallu adapter cette technique pour développer des générateurs de gouttes précis. Le deuxième réside dans le fait que ces vannes imposent la forme semi elliptique des canaux fluidiques pour permettre une fermeture efficace. Cela peut être dommageable si on veut faire circuler nos particules dans des géométries différentes.

L'idée a été d'externaliser ces vannes par rapport au circuit microfluidique d'étude, pour pouvoir fabriquer les circuits sans se soucier de leur présence. On a ainsi fabriqué un générateur de goutte à la demande, indépendant du circuit microfluidique, voir figure 3.3a. La vanne est le bloc de PDMS coloré que l'on colle sur notre circuit d'étude. Une partie de ce travail a été fait au laboratoire avant mon arrivée [55]; j'ai perfectionné le système pour pouvoir le faire fonctionner comme un système particulièrement performant de gouttes à la demande. Le détail de la fabrication de ces vannes externes est donné dans l'annexe D en fin de chapitre. Il s'agit d'une superposition de canaux. Un canal de contrôle est collé sur le canal fluidique de manière à ce que seule une fine couche de PDMS sépare les deux canaux. Ce canal de contrôle dispose d'une entrée mais pas de sortie (en vert sur les clichés de la figure 3.3b). En imposant une pression dans ce canal, la fine couche de PDMS agit comme une valve permettant de refermer le canal juste en dessous (voir Annexe C pour plus de détails techniques). Les différentes tailles du canal de contrôle, du canal fluidique et de la fine couche de PDMS doivent être correctement choisies pour une fermeture opti-

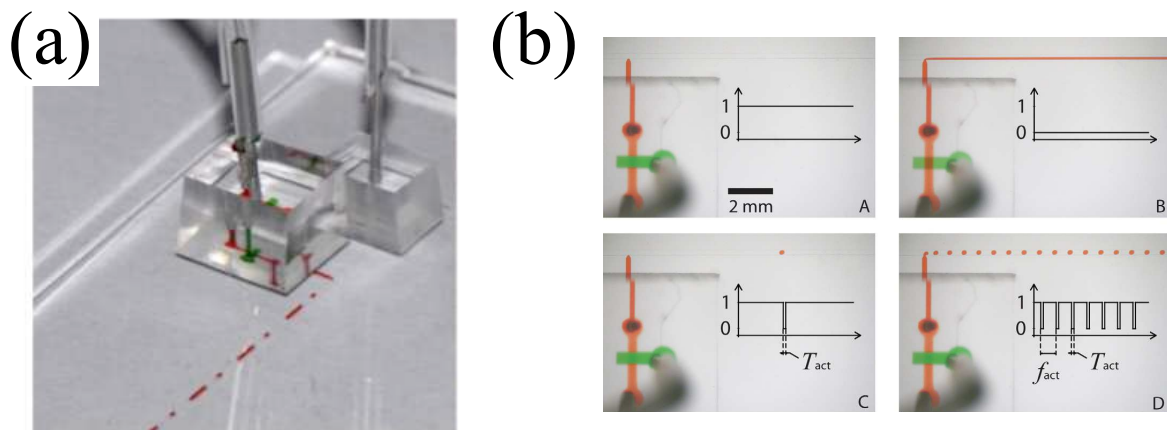


FIGURE 3.3: Système de goutte à la demande. Extrait de [55]. a) Photo d'une vanne externe collée sur un circuit microfluidique. b) Photo de la formation de gouttes grâce à une vanne externe. Cela montre que la vanne permet un contrôle rapide et efficace de la production de gouttes.

male. Une paroi trop fine ou trop épaisse entre le canal de contrôle et le canal fluidique va être responsable de la formation de gouttières qui créeront une fuite du liquide. Bien que minime, ce type de fuite peut nous empêcher d'atteindre les performances souhaitées.

Cette technique admet plusieurs avantages qui vont nous être profitable dans notre étude :

- Ce système permet de fabriquer des gouttes relativement monodisperses ( $\pm 5\%$  sur le rayon souhaité dans notre gamme d'étude). On a un générateur de gouttes à la demande efficace.
- La forme générale du circuit n'est pas imposée par la présence de vannes. Le canal d'étude n'est pas de forme semi-elliptique et aussi le rapport d'aspect n'est pas imposé.
- La fabrication de vannes nécessite une lithographie multicouche qui est plus longue et plus complexe que les techniques simples présentées dans l'annexe A. Décorréliser les vannes du canal est donc un gain de temps certain en terme de fabrication microfluidique.

Ainsi en collant simplement par plasma ces vannes, on obtient un système de gouttes à la demande efficace, voir figure 3.3. La pression dans le canal de contrôle peut être imposée par une vanne solénoïde (Lee Valve LHDA121115H dans nos expériences) pour avoir une réponse rapide (de l'ordre de la milliseconde). Le canal de contrôle est rempli d'eau pour pouvoir fermer plus rapidement qu'avec de l'air (compressibilité de l'air). En imposant les temps de fermeture et d'ouverture de cette vanne solénoïde, on peut aisément contrôler la taille et la fréquence d'injection des particules, comme on le voit sur les clichés de la figure 3.3b.

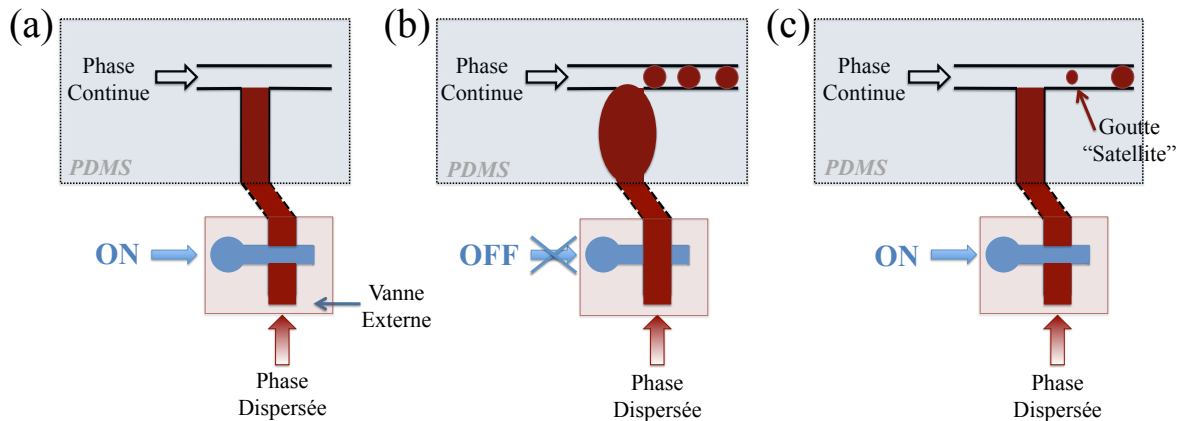


FIGURE 3.4: Formation de gouttes satellites due à l'élasticité du PDMS. a) Le système est au repos et à l'arrêt. Vanne solénoïde en marche. b) Vanne solénoïde à l'arrêt. Les gouttes sont fabriquées à la jonction en T. Le canal en T s'élargit du fait de la différence de pression imposée rapidement. c) Vanne solénoïde en marche. Le canal en T retrouve sa forme initiale, ce qui crée la formation d'une goutte satellite.

Mais, l'élasticité du PDMS induit un temps de réponse de 50 ms. Ainsi, on ne peut pas *via* ce système injecter des particules à des fréquences supérieures à 10 Hz. Classiquement, la fermeture de ces vannes nécessite une surpression d'environ 500 millibars entre la pression de la phase dispersée et la pression du canal de contrôle. Cela est très dépendant de la forme du canal qui se ferme plus ou moins facilement. Il se forme parfois dans ce système des gouttes satellites lors de l'utilisation courante. Ainsi parce que nous avons besoin d'un générateur très performant, nous avons réglé ce problème.

La production inopinée de gouttes satellites dérive en réalité d'une propriété du matériau dans lequel est fabriqué le canal d'étude : l'élasticité du PDMS. En effet, comme l'ont présenté Panda *et al* [56], l'élasticité du PDMS peut parfois induire un flux de liquide. Lorsqu'on ferme le débit avec la vanne solénoïde, on impose dans le canal de contrôle une surpression d'au moins 500 millibars en quelques millisecondes. Cela a pour conséquence d'appuyer fortement le long des parois du canal fluide. Le PDMS étant élastique, les parois du canal s'écartent pour absorber cette surpression, comme cela est expliqué par le schéma de la figure 3.4. Puis ce canal relaxe en retrouvant sa taille initiale. Lors de ce retour à l'état initial, un flux de liquide est induit, ce qui peut créer une goutte satellite.

La solution pour répondre à ce problème tire parti du fait que la vanne est externe au canal d'étude. On peut ainsi utiliser un autre matériau que le PDMS pour notre canal d'étude. En 2008, Bartolo *et al* [57] ont mis au point une technologie qui permet de fabriquer des circuits microfluidiques en un matériau photoréticulable de haut module d'Young, une résine à base de thiolène (NOA 81, Norland Optical Adhesive). Ces "stickers" ne se déforment pas

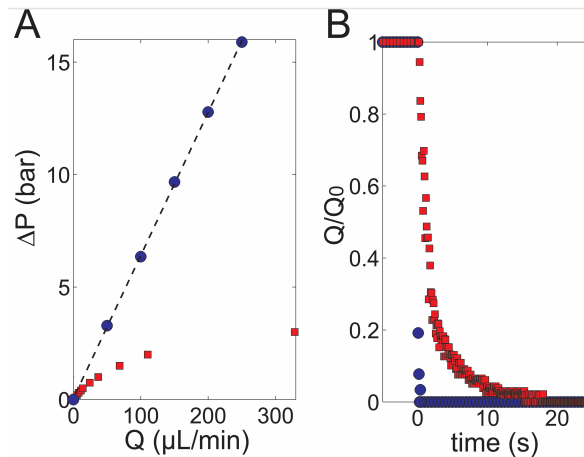


FIGURE 3.5: Efficacité des Stickers. Tiré de [57]. a) Chute de pression  $\Delta P$  en fonction du débit pour un circuit microfluidique long de 2 cm (section carré de  $200 \times 16 \mu\text{m}$ ) pour le PDMS (carrés rouges) et la NOA (cercles bleus). b) Evolution du débit normalisé pour un mélange d'eau et de glycérine après une chute de pression de 3 bars à 0 bars, appliquée au temps  $t = 0$ .

lorsqu'on leur applique de fortes pressions, allant jusqu'à la dizaine de bars. Une comparaison entre des circuits en PDMS et ces stickers est proposée sur la figure 3.5. Cette figure montre que le temps de réponse du matériau est quasi nul et qu'il ne se déforme pas pour les pressions considérées.

Par ailleurs, le PDMS a la fâcheuse propriété d'être poreux aux alcanes. Ainsi faire s'écouler un alcane dans un canal en PDMS va modifier ses propriétés dont sa taille ; on parle alors de gonflement en contact de phase organique. Cela modifie la taille du circuit et par conséquence la vitesse de la phase continue<sup>1</sup>. Cela n'est plus le cas avec la NOA qui apporte une amélioration à ce système. On peut alors utiliser le système pendant de longues heures sans variation significative de la taille des canaux et donc de la vitesse de la phase continue. Ainsi en combinant cette technologie avec l'externalisation des vannes, on a réussi à fabriquer un système performant de gouttes à la demande. Il faut cependant noter que le collage par plasma des vannes PDMS sur un circuit fabriqué en NOA est beaucoup moins résistant qu'un collage sur un circuit PDMS. Une attention particulière doit être portée à cette étape. Le point clé réside dans la pureté du plasma à oxygène qui ne doit contenir que des traces d'autres gaz.

Autre point parfois gênant, la présence de bulles d'air dans le canal fluidique de la vanne externe. L'air étant compressible, cela crée de la même manière des gouttes satellites

1. La phase organique est nécessairement la phase continue car le gonflement de la vanne externe par de l'huile la rend inutilisable. Les gouttes doivent donc être aqueuses, ou du moins d'un liquide qui ne modifie pas la forme du canal (huile fluorée, éthanol, ...).

lors de la fermeture et l'ouverture de la vanne. Il est donc indispensable de les éliminer. Une des solutions simples semble être de pousser fortement dans le canal, mais le fait que le canal soit en NOA le rend étanche à l'oxygène et ces bulles restent coincées à la jonction entre la vanne et le canal d'étude. Il faut alors faire une entrée du canal en NOA la plus fine possible pour éviter de créer des lieux de piégeage de bulles. Mais cela est parfois insuffisant. On peut alors faire s'écouler de l'éthanol dans ce canal. En effet, la bulle d'air se dissout plus efficacement au contact de l'éthanol. Il suffit ensuite de soigneusement changer l'entrée d'éthanol en eau pour utiliser le système. Notez que dans ce cas-là, l'éthanol peut modifier les propriétés de surface du canal. Il faut faire s'écouler le liquide originel pendant un certain temps pour retrouver les propriétés de surface initiale.

J'ai optimisé un système existant pour le rendre réellement utile à la compréhension de l'écoulement de particules dans des réseaux microfluidiques. Nous disposons d'un système performant pour créer des gouttes de tailles voulues à une fréquence voulue. Ce système nous permettra de réaliser des mesures quantitatives avec une très faible variation de la taille des gouttes pendant une dizaine d'heures. Je vais maintenant détailler de quelle manière originale nous avons alimenté en fluide ces canaux pour permettre une utilisation plus aisée de ces systèmes microfluidiques.

## 3.2 Alimentation en fluide

La plupart des circuits microfluidiques sont alimentés en fluide grâce à des pousse-seringues. Ils ont l'avantage de faire un contrôle en débit mais comme inconvénients d'avoir un temps de réponse long (jusqu'à plusieurs minutes pour des débits faibles) et de faire des à-coups assez importants par rapport à la valeur consigne. Pour s'affranchir de cela, on peut contrôler les fluides en imposant les pressions aux réservoirs de fluide. Les contrôleurs de pression répondent, de manière générale, rapidement à une consigne (de l'ordre de la dizaine de milliseconde) et sans à-coups.

Ainsi, j'ai fabriqué un régulateur électronique de pression comportant des contrôleurs de pression (Sensortech VSO-HP) avec ses modules d'alimentation électrique et d'alimentation en air comprimé, voir figure 3.6. Les contrôleurs répondent à une consigne électrique qui est directement pilotée par ordinateur par l'intermédiaire d'un logiciel que j'ai implémenté. Une étape de calibration est nécessaire pour une concordance exacte entre consigne électrique et consigne en pression. Des éléments électroniques de contrôle sur la tension à appliquer ont été fabriqués pour une meilleure stabilité aux basses pressions (voir figure 3.6). En effet, il a été vu empiriquement que lorsqu'on cherche à obtenir une pression

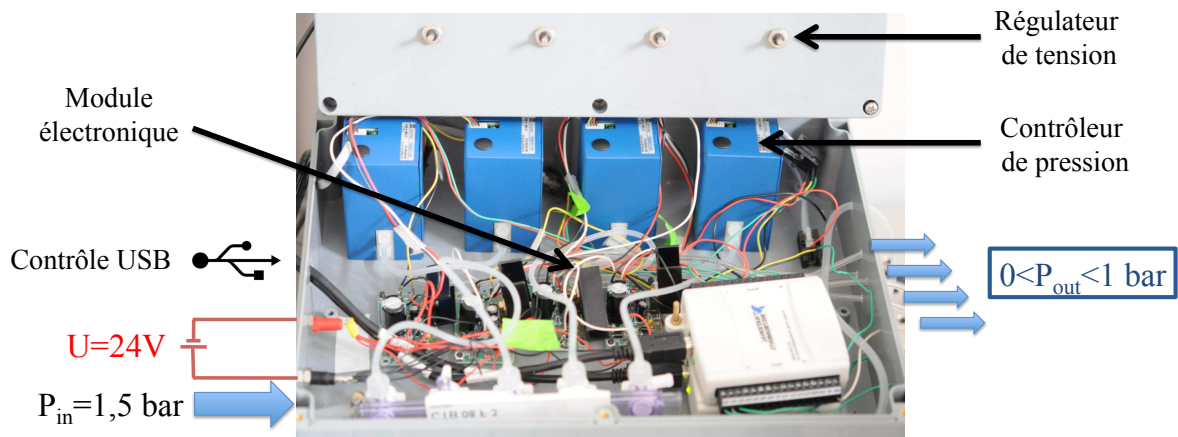


FIGURE 3.6: Régulateur électronique de pression fabriqué au laboratoire. Ce système permet de contrôler indépendamment par ordinateur 4 sorties réglées en pression entre 100 millibars et 1bar.

inférieure à 100 millibars, les fluctuations de la valeur obtenue décroissent lorsqu'on diminue la tension d'alimentation aux bornes du contrôleur. Il a donc été ajouté un petit circuit qui permet de contrôler la tension appliquée aux bornes de chaque contrôleur. On dispose *in fine* de 4 sorties entre 50 millibars et 1 bar pilotables simplement par ordinateur et qui permettent de gérer les différents débits en fluide.

Mais ce contrôle admet aussi un désavantage important : le débit dépendra de la résistance hydrodynamique du circuit qui, elle, peut dépendre de la présence de particules. Pour s'affranchir de ce problème, la stratégie a été de placer, en amont des entrées des canaux fluidiques de fortes résistances hydrodynamiques (voir figure 3.7). Ainsi les fluctuations de résistance hydrodynamique seront minimales comparées à la résistance totale du circuit. On a transformé un contrôleur de pression en générateur de débit. On allie les performances des contrôleurs de pression (réponse rapide) avec celle des pousse-seringues (contrôle en débit indépendant des circuits).

Le circuit présenté sur la figure 3.7 va nous permettre de faire des mesures quantitatives sur le transport de particules qui seront présentées dans les chapitres suivants. Le paramètre de contrôle sera le courant en particule, qui sera totalement décorrélié de la taille des particules. On pourra alors faire varier ce paramètre sur plus d'une décade.

Mais ces techniques de gouttes présentées ici ne nous permettent pas d'étudier la dynamique d'objets solides ni même d'étudier la dynamique de motifs spatiaux particuliers de gouttes, comme un cristal de maille définie. En effet, les jonctions en T ne permettent d'utiliser que des gouttes ou des bulles et la production se fait à un endroit précis qui empêche par exemple de fabriquer directement *in situ* un cristal 2D de particules et d'étudier sa

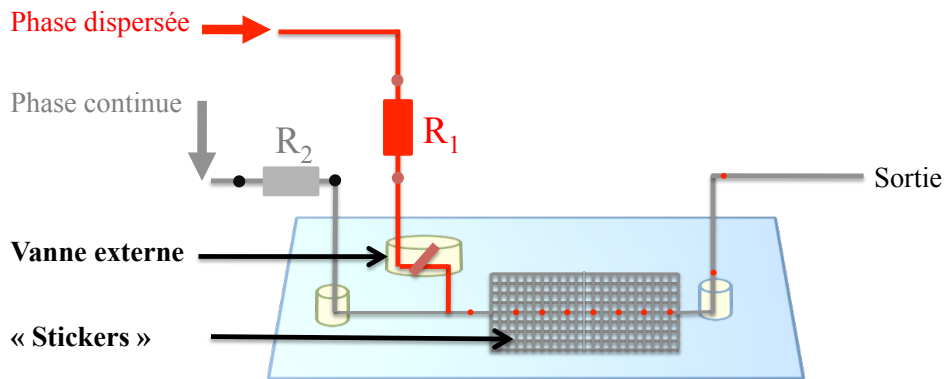


FIGURE 3.7: Schéma de principe d'une expérience caractéristique de mon travail. La présence des résistances hydrodynamiques ( $R_1$  et  $R_2$ ), de la vanne externe et du "stickers" permet un contrôle indépendant de la taille des particules, de leur interdistance et de la vitesse de la phase continue.

dynamique sous écoulement.

Nous allons voir dans la section suivante que des techniques microfluidiques nous permettent de relever ces défis et comment nous les avons adaptées à notre problématique.

### 3.3 "Flow Lithography"

Pour étudier l'écoulement de particules solides pour lesquelles on puisse choisir la position initiale, nous avons utilisé la technique de "flow lithography" [58] mise au point en 2006. Cette technique permet de fabriquer des particules polymères de forme complexe à des tailles micrométriques, directement à l'intérieur du canal microfluidique. L'idée principale est l'utilisation d'un polymère acrylate liquide (durant mes expériences, du polyéthylène glycol de taille  $N=400$ ) contenant un initiateur photosensible (Esacure KL 200 (2-Hydroxy-2-méthyl-1-phényl-1-propanone), 5 % en masse). On fait s'écouler ce polymère dans un canal microfluidique, comme on le voit sur la figure 3.8a. Les particules sont ensuite formées en exposant à la lumière UV à travers un masque ayant la forme voulue (voir figure 3.8a) en utilisant un microscope. Cela est possible car le plan optique contenant le canal est conjugué avec une ouverture dans le microscope correspondant au diaphragme de champ. La polymérisation rapide du polymère ( $< 0.1s$  dans notre système) permet une fabrication sous écoulement des particules, pour une vitesse limitée ( $< 100 \mu m.s^{-1}$  dans notre système). Le point important lors de cette réaction chimique est la présence de molécules d'oxygène le long des parois en PDMS, poreux à cet élément. La réaction de polymérisation est inhi-



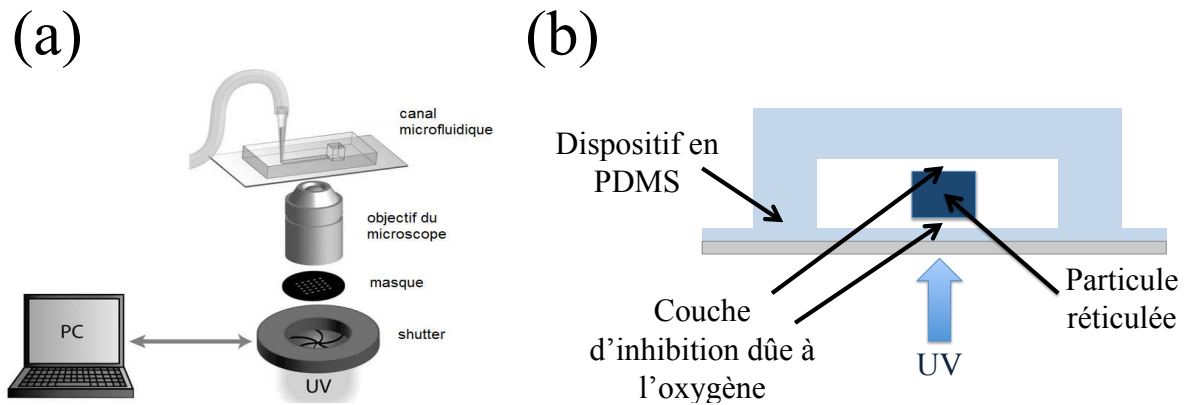


FIGURE 3.8: Technique de "flow lithography". a) Schéma de la technique de fabrication *in situ* de particules polymères. b) Vue en coupe d'un circuit microfluidique qui montre la présence d'oxygène inhibant la réaction.

bée par la présence d'oxygène et cela permet donc de laisser une fine couche de polymère non réticulée entre les parois du canal et les particules, comme cela est représenté sur la figure 3.8b. Les particules peuvent ainsi s'écouler librement dans le canal et ne sont pas bloquées dans le circuit microfluidique.

Je tiens ici à insister sur un point technique du montage expérimental. Il est essentiel dans cette expérience de bien conjuguer le plan objet du microscope et un autre plan. Un microscope est fabriqué de telle manière qu'il existe une ouverture pour placer un diaphragme de champ conjugué avec ce plan objet. Mais ce plan est conjugué pour des rayons

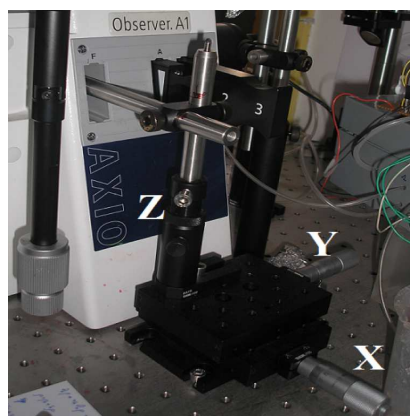


FIGURE 3.9: Photo de l'ouverture au niveau du diaphragme de champ du microscope. Un contrôle en  $x$ ,  $y$  et  $z$  permet de parfaitement conjuguer ce plan avec celui de l'objet.

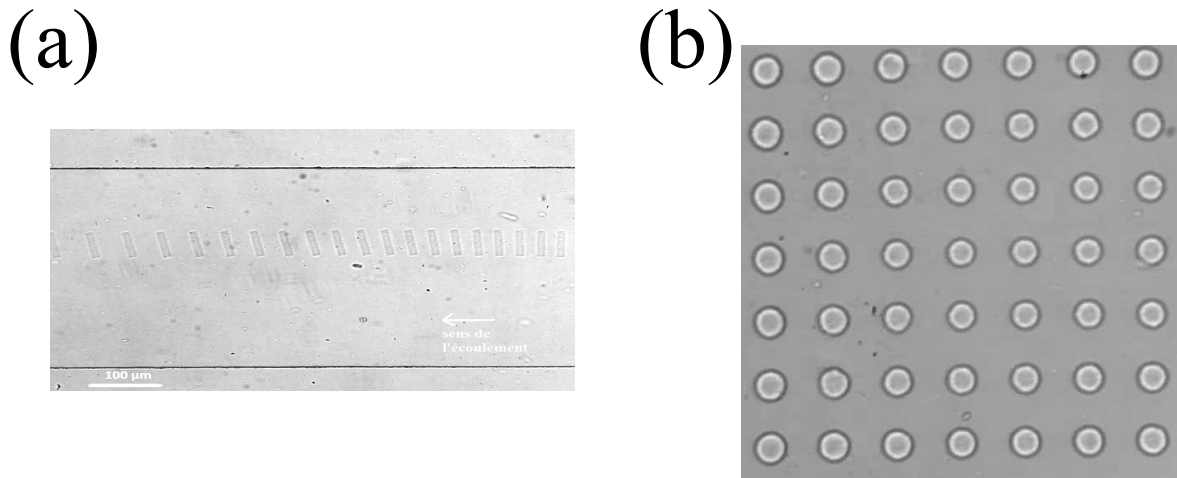


FIGURE 3.10: Exemples d'expériences réalisées au laboratoire. a) Bâtonnet de section  $25 \times 100\mu m$  (hauteur  $20\mu m$ ) fabriqués à une cadence de 2Hz. b) Cristal 2D de particules de rayon  $50\mu m$ , hauteur  $20\mu m$ .

appartenant au visible. Les différentes aberrations chromatiques des nombreuses lentilles<sup>2</sup>, décalent la position de ce plan pour des rayons de longueurs d'ondes différentes. Notre photoinitiateur est sensible à des rayons de longueurs d'ondes comprises entre 150 et 300 nm. Il faut donc effectuer un réglage précis avant une expérience pour bien conjuguer le plan objet et cet autre plan pour des rayons dans l'UV (invisible à l'œil).

Nicolas Desreumaux a durant son stage de Master 2 adapté un bras optique à l'intérieur du microscope (voir figure 3.9) pour nous permettre de plus facilement mettre notre masque dans le plan désiré. Le masque est placé sur un bras réglable qui permet d'ajuster, *via* des vis micrométriques, sa position dans les 3 directions de l'espace,  $x$ ,  $y$  et  $z$ .

La forme des particules est alors uniquement déterminée par la forme du masque employé. Ce masque est un simple transparent d'imprimerie. Leur taille n'est donnée que par le grossissement du microscope et la taille du masque. Nous avons par exemple au laboratoire, avec notre microscope Zeiss Axio et un objectif 10X, réussi à fabriquer de manière parfaitement reproductible des bâtonnets de dimension  $25 \times 100\mu m$  (hauteur  $20\mu m$ ) à une cadence de 2Hz, ou un cristal 2D régulier de disques, voir figure 3.10a.

En utilisant différents masques, différentes hauteurs de canal et différents grossissements on peut fabriquer des particules de tailles et formes différentes. Nous pouvons alors étudier l'influence de l'anisotropie des particules, figure 3.10a, mais aussi la stabilité sous écoulement d'un cristal 2D de particules, figure 3.10b.

2. Pour notre microscope Zeiss, les rayons lumineux traversent entre le diaphragme de champ et l'objectif plus de 10 lentilles.

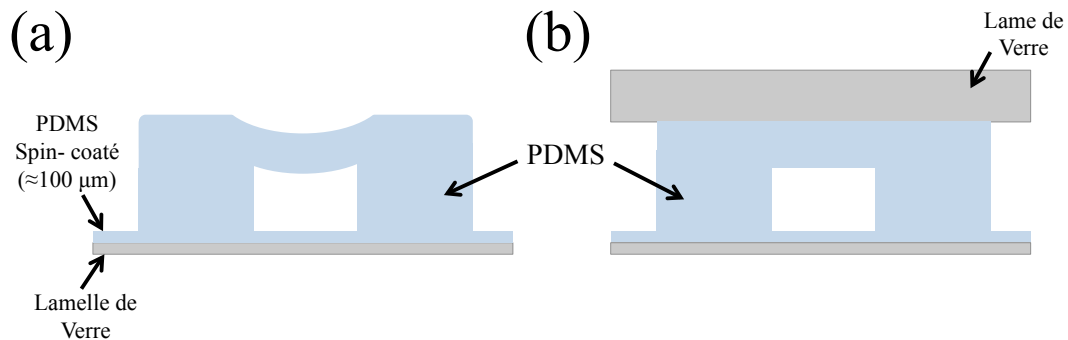


FIGURE 3.11: Vue en coupe du canal microfluidique utilisé. Le canal nécessite d'avoir toute ces parois en PDMS pour inhiber la réaction de polymérisation. a) Le plafond en PDMS s'affaisse, dû à son faible module d'Young. b) Le fait de coller une lame de verre permet de rigidifier le plafond et de rendre le canal plus homogène en hauteur.

Malgré tous les avantages de cette technologie, elle comporte certains inconvénients qu'il convient de noter ici. Outre une certaine complexité de mise en oeuvre, deux problèmes majeurs sont à mettre en avant. Tout d'abord, le fait que les particules soient solides exige que le canal soit d'une hauteur parfaitement homogène. En effet, s'il y a une zone plus basse, les particules vont alors se bloquer ; ce qui ne sera jamais le cas pour des particules déformables. Il faut donc que la hauteur des particules soit inférieure ou égale à la hauteur du canal moins sa rugosité. Mais ce phénomène est exacerbé par la souplesse du matériau employé, le PDMS. En effet, le PDMS va avoir tendance à fléchir sous son propre poids, impliquant une diminution de la hauteur du canal. Pour palier cet inconvénient, nous rigidifions nos canaux en collant le PDMS sur des lames de verre, comme représenté sur la figure 3.11. La lame proche de l'objectif doit être fine pour que le plan focal de l'objectif du microscope puisse atteindre le centre du canal. Il faut aussi que la puissance des rayons UV permettant la réticulation ne soit pas trop diminuée par l'épaisseur de verre. On spincoate du PDMS sur une lamelle de verre pour réaliser cela. Sur l'autre face, on colle une lame de verre pour empêcher le canal de s'effondrer.

Dans l'autre limite, il faut que les particules soient suffisamment hautes pour qu'elles soient réellement confinées et ne soient pas de simples traceurs du fluide. En effet, la longueur d'interaction va fortement dépendre de la distance entre les parois du canal et la particule, comme on le verra dans les chapitre suivants. Ces deux effets antagonistes rendent parfois les mesures complexes, mais le bénéfice de cette technique est immense pour l'étude d'objets en milieu confiné car elle permet de choisir la position initiale des particules et ainsi de parfaitement sonder les interactions hydrodynamiques (voir chapitre 7).

	Jonction en T	Système Dilueur	Vannes Externes	“Flow Lithography”
<u>Chap3:</u> Transport 1D de particule dans un réseau microfluidique	La corrélation entre la taille des particules et le courant d’injection rend toute étude quantitative impossible	La taille et le courant en particule ne sont corrélés uniquement sur une plage restreinte de fonctionnement.	Permet un contrôle indépendant de la taille et du courant en particule. Fonctionne parfaitement sur plus d’une décade en courant.	Cette technique crée un espace entre les parois du canal et diminue de fait la portée des interactions entre particules.
<u>Chap 4:</u> Stabilité d’un cristal 1D de particule	La corrélation entre la taille des particules et le courant d’injection rend toute étude quantitative impossible.	Permet d’augmenter localement la densité de manière précise. Nécessite une mesure du débit.	Le changement de fréquence de la vanne induit la formation de gouttes satellites.	Cette technique crée un espace entre les parois du canal et diminue de fait la portée des interactions entre particules.
<u>Chap 5:</u> Ecoulement d’un nuage 2D de particules	La corrélation entre la taille des particules et le courant d’injection rend toute étude quantitative impossible.	Permet de très facilement atteindre de fort courant en particules. Mais cela nécessite une mesure du débit et aussi de travailler sur une plage restreinte de courant.	Permet un contrôle indépendant de la taille et du courant en particules. Mais le courant maximal en particule est limité.	Cette technique crée un espace entre les parois du canal et diminue de fait la portée des interactions entre particules.
<u>Chap 6:</u> Ecoulement de cristal 2D de particules	Impossibilité de former des cristaux à façon.	Impossibilité de former des cristaux à façon.	Impossibilité de former des cristaux à façon.	Permet de choisir exactement la forme du cristal voulue.

FIGURE 3.12: Tableau récapitulatif des questions soulevées durant ma thèse et des différentes techniques expérimentales mises au point au laboratoire. Les cadres rouges indiquent les techniques optimales qui sont donc les solutions choisies.

### 3.4 Plusieurs techniques, un objectif

Nous avons parcouru dans ce chapitre différentes technologies microfluidiques et j’ai essayé de décrire mon apport à celles-ci. Le transport de particules en milieu confiné regroupe de nombreuses questions et c’est pour répondre à certaines de ces questions que j’ai développé ces techniques au laboratoire. Le tableau 3.12 résume les différentes problématiques sur lesquelles je me suis attardé durant ma thèse. Il montre que l’utilisation d’une technique pour répondre à une interrogation est issue de réflexions. J’ai à chaque fois essayé de trouver la technique optimale.

Ainsi, on peut déduire de ce tableau que l’utilisation des vannes externes est la meilleure solution pour étudier le transport unidimensionnel de particules dans un réseau, ce qui est l’objet du chapitre 4.

L’étude de la stabilité d’un cristal hydrodynamique 1D est plus facilement réalisée via l’utilisation d’un système à dilueur (chapitre 5), tandis que la technique de “flow lithography” permet une étude précise de l’écoulement d’un cristal de particules bidimensionnel de maille donnée (chapitre 7).

Je vous ai décrit dans ce chapitre différentes techniques expérimentales car elles m'ont permis de répondre à diverses questions. Chacune d'entre elles est le meilleur outil pour répondre à une problématique précise.

Nous allons maintenant nous intéresser aux réponses apportées par toutes ces expériences. Pour commencer, je vais décrire une expérience sur un réseau d'obstacles. Nous allons chercher à comprendre la dynamique de transport de particules dans ce type de canal.

## Annexe A : Technique de lithographie douce

La technique de lithographie douce repose essentiellement sur des propriétés particulières de matériaux polymères (voir figure 3.13).

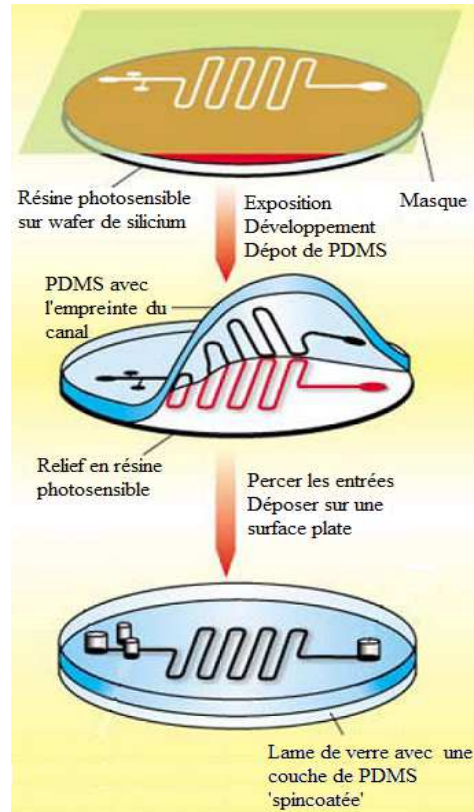


FIGURE 3.13: Protocole de fabrication d'un circuit en PDMS via les techniques de "soft lithography".

La première étape consiste à dessiner le futur canal que l'on souhaite obtenir. Ce masque ainsi défini peut être un simple transparent d'imprimerie ou une surface de chrome gravée dans le cas de fabrications plus précises (pour des tailles inférieure à la dizaine de microns). Pour passer du dessin d'un canal à sa reproduction en série dans le matériau polymère final, il faut construire un moule du canal voulu par photolithographie ([59] , [48] ou [60] pour plus de détail). On étale alors par spin-coating une résine photosensible commerciale sur un wafer en silicium ; la vitesse de rotation permettant de choisir l'épaisseur de résine. Cette résine est ensuite réticulée par exposition aux rayons ultraviolets à travers le masque. Après développement dans un solvant adapté, on obtient le motif du masque en relief sur le wafer sur une épaisseur contrôlée (figure 3.13). Cette étape nécessite une fabrication en salle blanche, mais une fois ce moule obtenu, le canal obtenu peut être indéfiniment reproduit sans équipement de fabrication particulier (figure 3.13).

Le matériau le plus couramment utilisé pour la fabrication de canaux microfluidiques est le PDMS (polydiméthylsiloxane). Un mélange de la base et de l'agent réticulant pour cet élastomère (liquide) est versé sur le moule de résine précédemment fabriqué, puis après polymérisation, devient solide. Une fois le motif élastomère réticulé, il se démoule aisément et le système peut être fermé avec une autre surface de PDMS ou une lamelle de verre (figure 3.13c). Le protocole est détaillé par Duffy et al. [59].

Le succès de cette technologie repose sur plusieurs éléments. Tout d'abord, le système finalement obtenu est optiquement transparent et le motif du moule est reproduit avec une précision supérieure à 100 nm. Il est aisé de connecter un tel système à des tubes et des éléments standards utilisés pour faire circuler des fluides. Enfin on peut reproduire plusieurs fois dans la même journée un même circuit et ceci pour un coût raisonnable. L'apparition de cette technologie a permis l'essor de la microfluidique grâce à la facilité d'utilisation et le faible coût du PDMS, allié à des propriétés optiques et chimiques appropriées. Cet essor a ensuite permis l'émergence de nouvelles techniques pour la fabrication de microcircuits. On peut utiliser maintenant des microfraiseuses qui supprime alors cette étape de photolithographie et gravent directement le circuit [61]. L'utilisation de nouveau matériau comme des polymères fluorés [62] rend les techniques d'embossage efficace pour la fabrication de microcircuit. Ceci n'est absolument pas exhaustif et montre juste le dynamisme de cette communauté.

## Annexe B : Technique de gouttes en microfluidique

Une des applications les plus prometteuses en microfluidique est de pouvoir utiliser des gouttes de très petit volume comme microréacteurs chimiques. Nous nous sommes servis de ces technologies en utilisant les gouttes ainsi formées comme des particules inertes. Je vais présenter dans cette section un bref historique des recherches qui ont permis d'aboutir à des techniques simples et reproductibles de fabrication de gouttes.

La capacité de générer des gouttes micrométriques dans des microcanaux a été en réalité antérieure à l'émergence des techniques de lithographie douce. En effet, par exemple, Ganan *et al* [63], ainsi que d'autres groupes [64], ont réussi la performance de fabriquer des gouttes de diamètre inférieur à  $70 \mu\text{m}$  dans une nappe de liquide, (voir figure 3.14a et b). L'écoulement permettant une telle performance est caractérisé par la formation d'un film liquide stationnaire perturbé par un jet laminaire de gaz. Cela permet une fabrication relativement monodisperse de particules comme cela est présenté sur la figure 3.14c. Ce dispositif a ensuite été amélioré pour augmenter le cisaillement au niveau du jet et ainsi créer des bulles de manière plus efficace, comme on cela est reporté dans un autre article [65].

Une approche similaire fut développée par Thorsen en 2001 pour fabriquer de manière reproductible des gouttes dans des microcanaux [17] issus des techniques de lithographie douce.

Cet article est vraiment le point départ de toutes les applications à base de gouttes en microfluidique ([66] et [67] sont de bonnes revues de ces applications). Le principe est

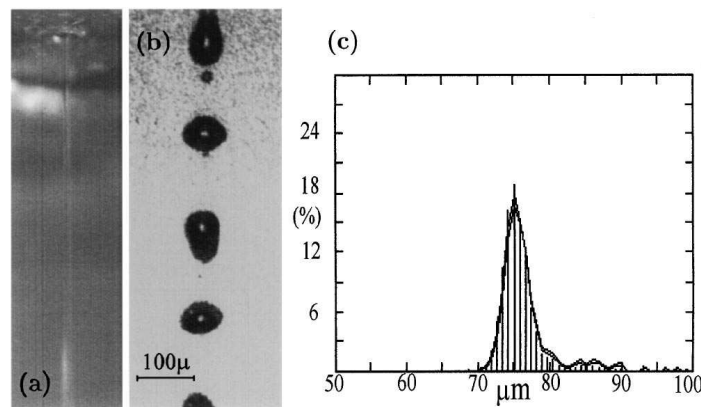


FIGURE 3.14: Schéma de principe de fabrication de gouttes par Gañán-Calvo. Extrait de [63] a) Vue du microjet près de la sortie de l'orifice. Diamètre  $d_j = 46 \mu\text{m}$ . b) Grossissement près de la région de rupture du jet, pris à la caméra rapide. Cette photo montre un motif régulier de rupture. c) Histogramme de la taille des gouttes produites par cette technique. Déviation standard 6.7%.



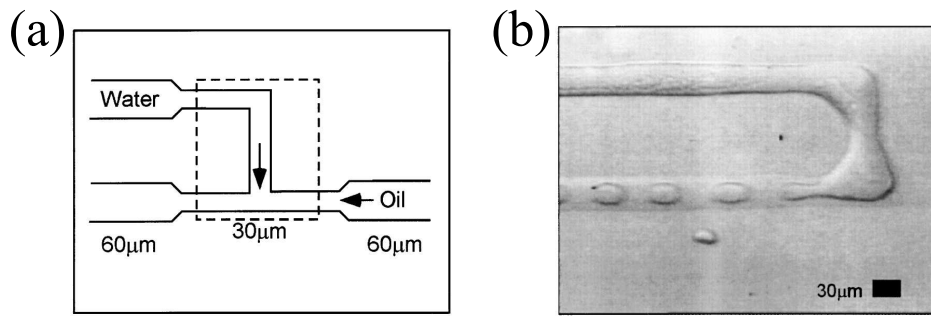


FIGURE 3.15: Jonction en T permettant la production de gouttes en microfluidique. Extrait de [17]. a) Schéma de la jonction. b) Vue expérimentale. Motifs réguliers de gouttes d'eau dans l'huile formées en sortie de la jonction.

d'utiliser une jonction en T entre deux liquides qui permet le cisaillement de la phase dispersée par la phase continue (voir figure 3.15). La physique de la formation des gouttes dans ces jonctions et leur régime de fonctionnement a ensuite été largement étudié. Je vous conseille la lecture de l'article de l'équipe de Whitesides [50] qui je pense résume bien la compréhension actuelle de ce phénomène. Il est à noter qu'à peu près au même moment une équipe japonaise caractérisait cette technique de production de gouttes [68].

On arrive à cette période, en 2001, à fabriquer de manière reproductible et à haute fréquence des gouttes par ce système. 18 mois plus tard, un raffinement important est apporté par Annaet *al* ([69]) en symétrisant cette jonction, comme on le voit sur la figure 3.16a. La

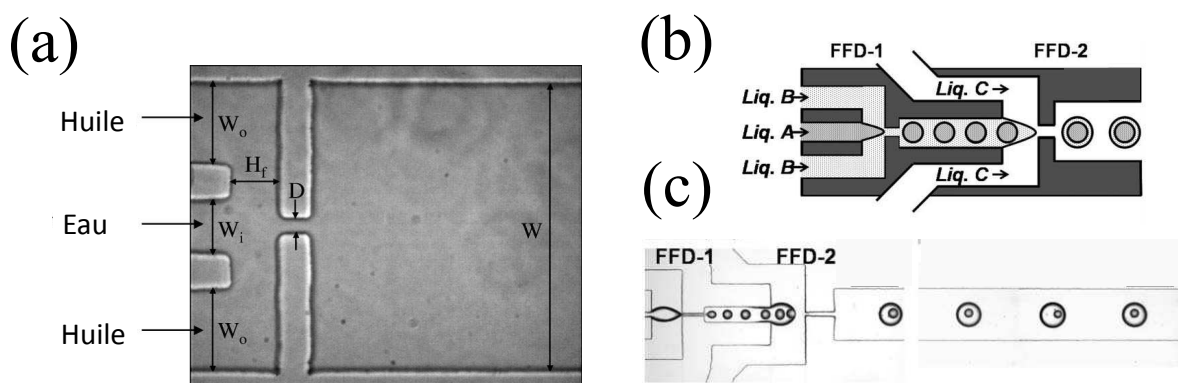


FIGURE 3.16: Technique de "Flow-Focusing" permettant la formation de gouttes en microfluidique. a) Schéma de la jonction permettant de faire des gouttes d'eau dans l'huile. Extrait de [69]. b) Schéma d'une double jonction permettant la formation d'émulsions doubles. c) Photo d'une expérience fabriquant une émulsion double. Tiré de [70].

technique a aussi été rapidement caractérisée [71]. La principale plus-value de cette technique est qu'elle permet de facilement fabriquer des émulsions doubles ou triples qui était quasiment hors de portée antérieurement aux avancées de la microfluidique (figure 3.16b et c).

Ces techniques présentées dans cette annexe ont ensuite permis un formidable essor de nombreuses applications. Le futur de la microfluidique se conjugue avec l'utilisation et l'amélioration de ces techniques.

## Annexe C : Technique de vannes en microfluidique

Il apparait tout de suite évident aux pionniers de la microfluidique qu'il faut développer des systèmes qui permettent d'ouvrir et de fermer efficacement des flux de liquide en microfluidique. En 2000, émerge une technique qui permet cela [52] et qui tire parti de l'élasticité du PDMS. On s'est effectivement aperçu que les canaux en PDMS sont assez mous pour que l'on puisse facilement les écraser ; cela a pour conséquence de couper l'alimentation en fluide. Mais si on utilise des canaux carrés, cet écrasement va induire la présence de gouttières dans les coins, synonyme de fuite. Le développement de protocoles expérimentaux permettant la création de canaux semi-elliptiques a permis de régler ce problème. Il a alors été possible de créer des superpositions de canaux qui permettent une gestion efficace des débits. Je vais maintenant détailler le fonctionnement de ces vannes microfluidique en me basant sur la figure 3.17.

Cette vanne est constituée d'une superposition de canaux. Le canal de la partie supérieure, le canal de contrôle, est un canal droit avec une seule entrée et pas de sortie. Ce canal est collé sur un canal fluide dans lequel s'écoule le liquide ; la paroi les séparant étant très fine. On peut imposer ensuite une forte pression dans le canal de contrôle ce qui aboutit à fermer le canal fluide. Un cahier des charges doit être rempli pour que cette vanne fonctionne correctement :

- Le matériau constituant le plafond du canal fluide doit être mou pour pouvoir être écrasé par le canal de contrôle, ce qui est le cas du PDMS.
- La forme du canal fluide doit être semi elliptique pour éviter que des gouttières se forment sur les bords et laissent ainsi passer du liquide.
- Les tailles du canal fluide et de la hauteur du plafond doivent être rigoureusement choisies pour que la fermeture soit optimale (voir <http://www.stanford.edu/group/foundry/Microfluidic/20valve/20technology.html> pour plus de détail).

On peut ainsi aisément contrôler l'ouverture et la fermeture de ces vannes grâce à l'utilisation de vannes solénoïdes qui imposent rapidement une pression forte dans le canal de

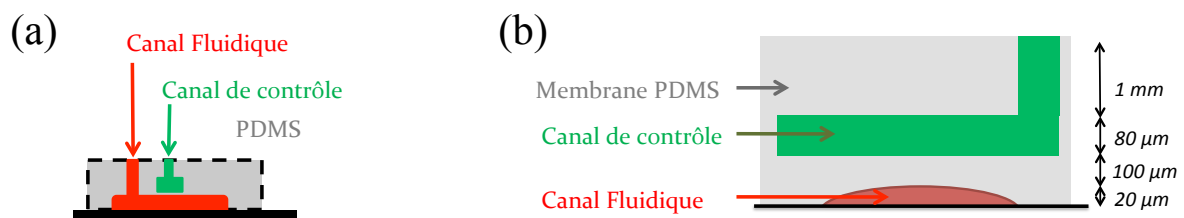


FIGURE 3.17: Schéma de principe des vannes fluidiques : a) Vue de profil. b) Vue de face. Pour un bon fonctionnement de la vanne, les différentes épaisseurs des canaux et de la membrane PDMS doivent être précisément choisies.

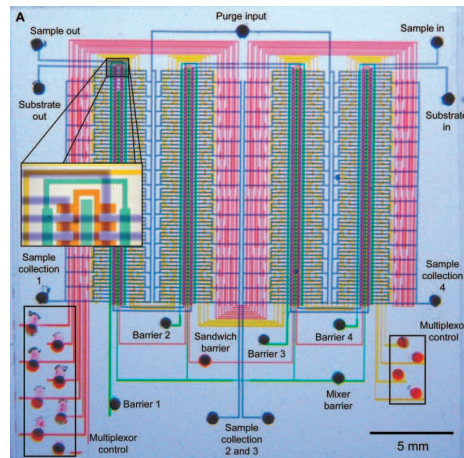


FIGURE 3.18: Multiplexeur microfluidique permettant notamment le stockage d'infime quantité de fluide. Extrait de [72].

contrôle. L'élasticité du PDMS impose quand même un temps de réponse minimal de fermeture de la vanne de l'ordre de 50 ms. Cela a ainsi permis un développement rapide des puces microfluidiques qui peuvent rapidement intégrer de très nombreux circuits en parallèle comme cela se voit sur la figure 3.18. Un tel circuit permet de stocker des informations sous forme fluide et d'effectuer des mélanges complexes.

Suite à la publication de cette technique, de nombreuses équipes ont adapté ce procédé pour les particularités de leur système et ont surtout amélioré la technologie originale. Parmi les plus récentes avancées, on peut citer le travail de l'équipe de Weaver [54] qui a fabriqué une vanne qui permet de ne pas avoir de surpression à l'intérieur du canal fluide lorsque celle-ci est mise en marche. Mosadegh *et al* [53] ont quant à eux développé une vanne avec un gain supérieur à 1, signifiant un temps de fermeture uniquement dépendant de la manière dont est alimenté le canal de contrôle.

## Annexe D : Protocole de fabrication de vannes microfluidiques externes

*Ce protocole a été extrait de la thèse de Naïs Coq [73].*

Deux lithographies sont nécessaires pour fabriquer les deux canaux perpendiculaires d'un bloc vanne. Le canal fluide doit être de section semi-elliptique pour pouvoir se fermer correctement et éviter ainsi la formation de gouttières. Le moule correspondant est donc réalisé en résine positive MAP 1275, qui donne le bon profil après cuisson. Rappelons qu'une résine est dite positive si les zones exposées aux UV sont dissoutes lors du développement. Le protocole de lithographie du canal fluide est schématisé sur la figure 3.19a. Le canal fluide doit avoir une section de rapport  $\sim 10$ , ici  $20 \mu\text{m}$  de haut pour  $200 \mu\text{m}$  de large. Le canal de contrôle, de section rectangulaire classique, est réalisé à partir d'un moule de résine négative (SU 8). Sa hauteur n'est pas critique. Nos canaux de contrôle mesurent de  $50$  à  $70 \mu\text{m}$  de haut pour  $200 \mu\text{m}$  de large.

Les deux canaux sont fabriqués séparément. Le PDMS du canal fluide est sous-réticulé, puis les deux canaux sont collés par gradient de réticulation. Ces étapes sont détaillées sur la figure 3.19.

Une fois démoulé et percé, le bloc vanne est refermé par une épaisseur de PDMS. Une couche de PDMS est spin-coatée sur une lame de verre, et laissée 30 minutes à  $73^\circ\text{C}$  (sous-réticulation). Le bloc vanne est déposé sur la surface, et l'ensemble est mis au four une nuit. Ce type de collage permet d'éviter quelques problèmes liés au collage plasma, pour lequel la fermeture du canal fluide est parfois irréversible.

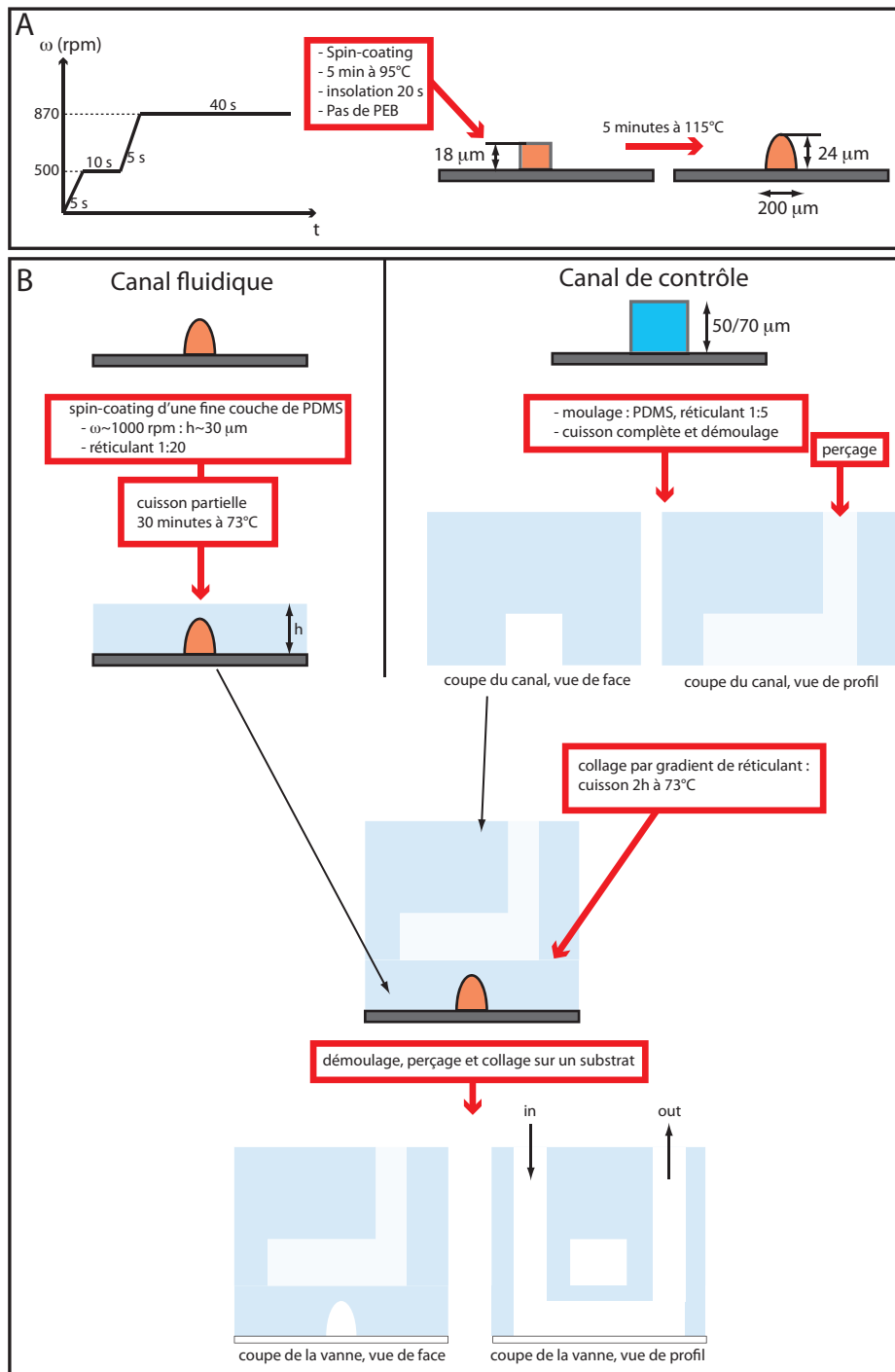


FIGURE 3.19: Fabrication des vannes. Les schémas ne sont pas à l'échelle. A : Protocole de lithographie pour la résine positive. Une dernière étape de cuisson modifie la forme des canaux. B : Lithographie multicouche, avec collage par gradient de réticulation. L'entrée du canal fluide (in) est ensuite connectée au réservoir de fluide, et la sortie (out) au canal d'étude.

## Transport unidimensionnel de particules confinées

Je vais détailler dans ce chapitre l'écoulement de particules dans un réseau microfluidique. Nous nous concentrons sur les courants d'injection en particule inférieurs au courant d'invasion  $j^*$ . Cela correspond au cas où toutes les particules sont localisées dans le chemin préférentiel du canal qui relie directement l'entrée à la sortie. Nous allons voir qu'il est possible de caractériser des états d'écoulements stationnaires avant l'invasion du réseau et nous montrerons que les interactions hydrodynamiques entre particules fixent ces conditions d'invasion.

Une partie des résultats présentés dans ce chapitre a été publiée dans une lettre [74] qui est reproduite à la fin du chapitre.

### 4.1 Cadre d'étude

Le réseau fluide d'étude est composé de  $14 \times 33$  obstacles cylindriques, disposés sur une maille carrée, voir figure 4.1 Le pas du réseau est de  $300 \mu m$ , la taille des obstacles est de  $150 \mu m$  et la hauteur du canal est de  $80 \mu m$ . Le canal est constitué d'une seule entrée et d'une seule sortie ce qui crée un chemin préférentiel pour les trajectoires des particules.

On a montré dans le chapitre précédent que la solution expérimentale idéale réside dans l'utilisation des vannes microfluidiques externes. Grâce à elles, on peut facilement modifier le courant en gouttes. **Le courant,  $j$ , est le paramètre de contrôle de notre expérience.** Il s'agit du nombre de particules injectées dans le système par seconde. Par conservation de la masse sur la ligne centrale, c'est exactement le produit de la vitesse des particules avec la

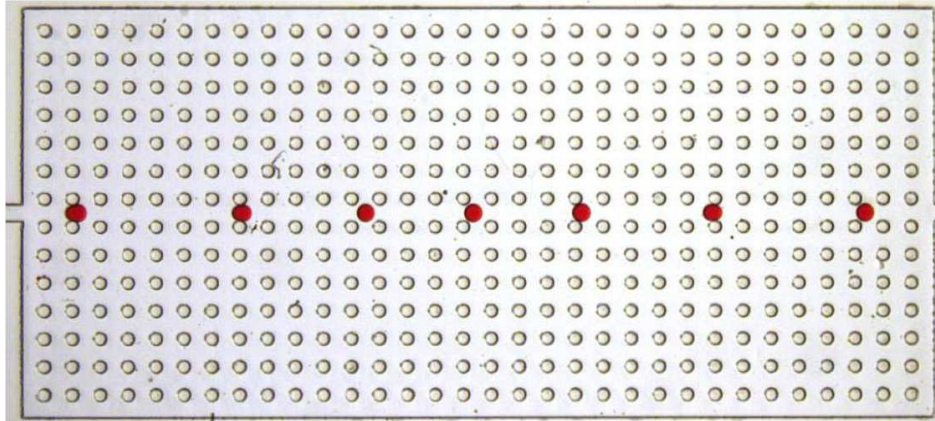


FIGURE 4.1: Gouttes d'eau colorée s'écoulant de la gauche vers la droite dans de l'hexadécane + Span 80 (3 % en masse). Courant imposé,  $j = 0.4 \text{ Hz}$ .

densité, soit  $j = \rho \times v_{\text{goutte}}$ . Cette valeur est exprimée en  $\text{Hz}$  et correspond aussi exactement à la fréquence d'ouverture de la vanne solénoïde, contrôlée informatiquement.

La pression des réservoirs en liquide est imposée *via* notre régulateur électronique de pression. L'utilisation de résistances en amont permet d'imposer le débit en phase continue. Une mesure du débit en sortie du circuit a aussi été réalisée dans les expériences pour valider cette hypothèse. Un tensioactif, le Span 80, est ajouté à la phase organique pour éviter la coalescence des gouttes. La proportion ajoutée est de 3% en masse, correspondant à une valeur légèrement supérieure à la concentration micellaire critique. On s'assure de cette manière que les interfaces soient saturées en tensioactif.

Les gouttes ont un diamètre  $D = 178 \pm 8 \mu\text{m}$ . Elles sont plus larges que hautes ( $h = 80 \mu\text{m}$ ); il s'agit de disques avec seulement une fine couche d'huile entre les gouttes et les planchers du canal. Nous étudions des gouttes confinées en écoulement à travers ce système expérimental.

Dans les expériences que je vais présenter dans ce chapitre la valeur de la vitesse de la phase continue au centre du canal est de  $1,7 \text{ mm.s}^{-1}$ . Nous mesurons le coefficient de mobilité,  $\mu$ , reliant la vitesse d'une goutte isolée à la vitesse du fluide ( $v_{\text{goutte}} = \mu \times v_{\text{fluide}}$ ), égal approximativement à 0,2. Ce coefficient est inférieur à 1 dû à la dissipation dans le film lubrifiant entre le canal et les gouttes. Le nombre Capillaire est constant, environ égal à  $Ca \sim 10^{-4}$ . Nous pouvons alors supposer que  $\mu$  est constant durant nos expériences. L'écoulement s'effectue à nombre de Reynolds égal à  $Re \sim 10^{-3}$ , signifiant que la dynamique du fluide est régie par l'équation de Stokes (Eq. 1.4).

A l'aide d'une binoculaire Nikon SMZ 1500 et d'une caméra Pixelink (PLB742F CMOS, 1280\*1024), une image de l'expérience est sauvegardée à une fréquence de 4 Hz pendant



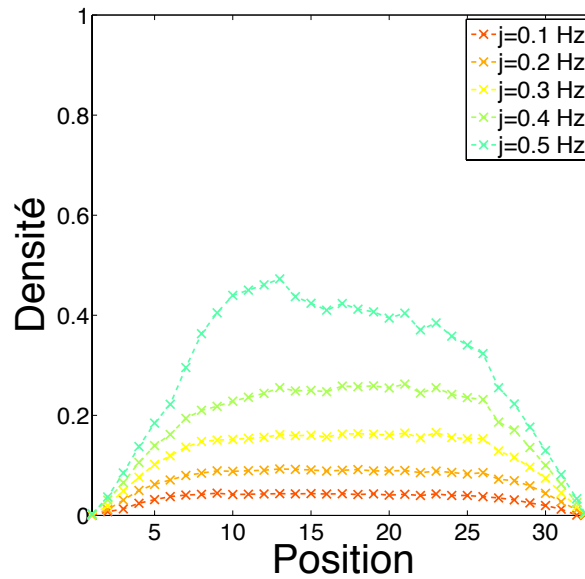


FIGURE 4.2: Profils de densité moyennés temporellement pour différentes valeurs de courant de particules. Ces profils sont normalisés par la densité de contact. L'abscisse position correspond aux noeuds du réseau.

30 minutes. Une goutte se déplace en moyenne sur un diamètre de particule entre deux images.

## 4.2 Résultats expérimentaux

Un protocole précis est déterminé pour ces expériences. On impose un courant  $j$  en particule, compris entre 0.1 Hz et 2 Hz (donné par la fréquence de la vanne solénoïde). On attend un temps long avant de commencer la mesure, correspondant à l'injection d'environ 500 gouttes dans le canal. Cette étude ne se focalise pas sur la période transitoire du signal mais sur l'état stationnaire.

Pour se faire une image claire du comportement de ce système, on représente sur la figure 4.2 la densité linéique moyenne en particules dans le canal central, pour des valeurs de courant assez faibles tel que toutes les particules se situent dans ce canal central. Cette densité **linéique** a été extraite par analyse d'image sous imageJ. Les croix de la figure 4.2 représentent la valeur moyennée temporellement sur l'ensemble de l'expérience et spatialement sur chaque noeud du réseau. Elle est normalisée par la valeur de la densité d'empilement compact. Une densité de 1 signifie donc que les gouttes sont en contact.

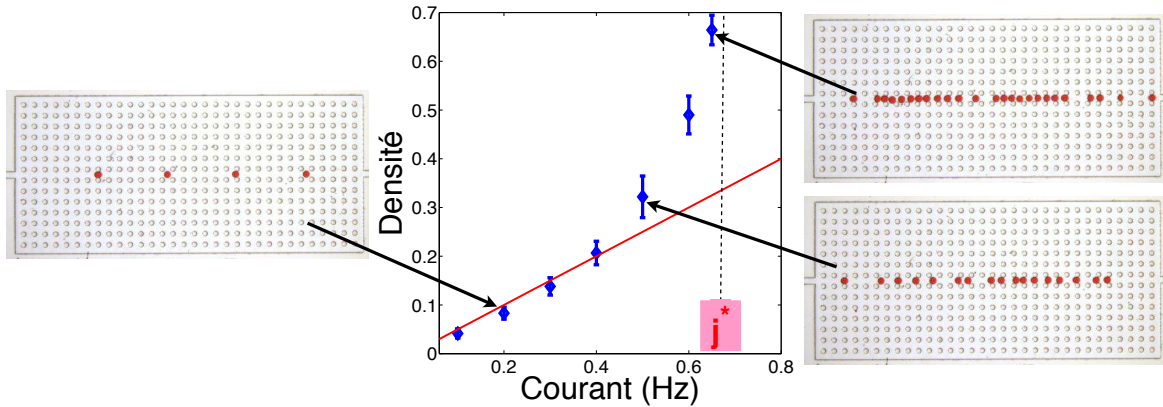


FIGURE 4.3: Densité moyenne de particules dans le canal central en fonction du courant imposé en particule. La courbe rouge est une approximation linéaire des premières valeurs égale à  $\rho = 2j$ . La courbe pointillée signale la limite en courant que ces densités semblent atteindre.

Notons premièrement pour les différents profils de densité, la présence d'une pente en amont et en aval du canal. Cela s'explique par le fait que le fluide entre et sort du canal en un seul point. La vitesse du fluide est par conséquent plus élevée au centre du canal proche des bords à cause de cette compression. Le profil de vitesse relaxe sur une distance environ égale à la largeur du réseau, soit 7 mailles. Au-delà, cette composante additionnelle tend vers 0. La vitesse du fluide est donc plus grande à ces endroits pour des raisons géométriques. Une expérience a aussi été réalisée pour des réseaux d'obstacles de dimension  $3 \times 32$ , toutes chose égales par ailleurs, et dans ce cas là, cet effet ne se voit que sur 3 mailles du réseau. Ainsi cela permet d'expliquer la présence de ces 2 pentes. Cet effet compressif n'est en rien responsable de l'invasion du réseau pour des courants supérieurs. Nous ne nous intéresserons plus dans la suite à ce simple effet hydrodynamique. Nous nous concentrons sur les valeurs au centre du canal.

Deuxièmement nous pouvons constater que la partie centrale des profils est plate, signifiant que les gouttes sont équidistantes durant les expériences. On peut alors clairement définir une densité moyenne stationnaire correspondant à un courant en particule donné. On peut à ce stade se demander si les particules ne sont pas simplement advectées par le fluide comme de simples traceurs de fluide. Pour avoir une caractérisation plus fine du comportement de ces particules, nous allons maintenant regarder plus en détail comment évolue la densité en fonction du courant imposé en particule.

Cela est représenté au centre de la figure 4.3. Cette courbe montre : (i) que le courant n'est pas simplement proportionnel à la densité; le trait rouge étant une approximation linéaire sur les premières valeurs de la courbe. Cela signifie que la vitesse des particules dépend de la densité en particule,  $j = \rho v_{\text{goutte}} \equiv \rho \times v(\rho)$ . Ceci est révélateur de la pré-

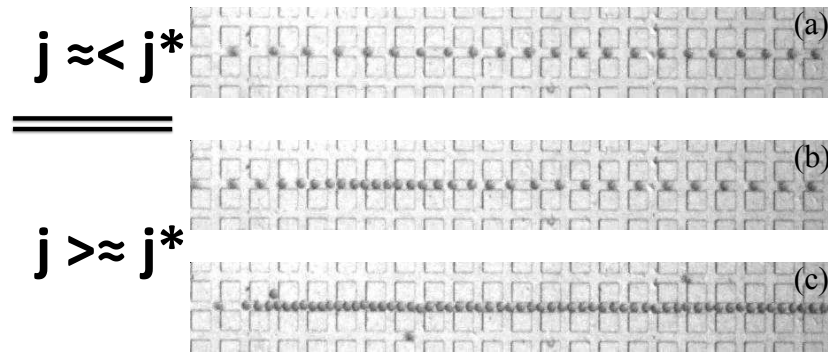


FIGURE 4.4: Expérience microfluidique dans un réseau d'obstacles carrés (pas du réseau=300  $\mu\text{m}$ , taille des obstacles=200  $\mu\text{m}$ ,  $v_{\text{goutte}} = 2\text{mm.s}^{-1}$ ). A noter, pas de différences qualitatives avec le réseau d'obstacles cylindriques présenté dans le manuscrit. a) Courant imposé  $j_1 < j^*$ . Solution stationnaire. b) Courant imposé  $j_2 > j^*$ . Photos prises 3 s après le changement de courant en particules. Solution transitoire. c) Courant imposé  $j_2 > j^*$ . Photos prises 30 s après le changement de courant en particules. Solution transitoire.

sence d'interactions hydrodynamiques entre particules dans ce système. Ces interactions sont longues portées ; des effets se font ressentir pour des valeurs faibles en densité. On a mis en évidence, *via* cette expérience, la présence d'interaction entre particules dans ce réseau d'obstacles. (ii) Un deuxième point intéressant ressort de ce graphe. La susceptibilité de la densité semble diverger lorsqu'elle approche une certaine valeur critique en courant, que nous appellerons,  $j^*$ . (iii) Lorsqu'on impose des courants en particules supérieurs à cette valeur critique, d'autres chemins, que celui reliant directement l'entrée à la sortie, commencent à être envahis.  $j^*$  est donc la valeur du courant d'envahissement du réseau. Cela est une particularité de ce système et nous allons l'étudier plus précisément dans le but de comprendre pourquoi nous n'atteignons pas des densités linéiques plus élevées pour des courants inférieurs à  $j^*$ .

Pour illustrer la dynamique de déstabilisation lorsque  $j > j^*$ , je vais maintenant présenter une expérience réalisée proche de  $j^*$ . Elle a été effectuée par B. Levaché durant son stage de master 2. Le réseau est légèrement différent que celui présenté jusqu'ici. Il ne s'agit que d'un exemple pour mieux comprendre la dynamique proche de  $j^*$  ; l'argument présenté sera uniquement d'ordre qualitatif.

Initialement, le système est stationnaire en dessous de  $j^*$ , puis le courant est très faiblement augmenté à une valeur très légèrement supérieure à  $j^*$ . Les conséquences sont reproduites sur la figure 4.4. Sur l'image A de la figure 4.4, une valeur stationnaire de la densité est établie. Nous sommes en dessous du courant d'invasion. Sur les deux images suivantes, on a juste faiblement augmenté le courant en particules. Le courant imposé est le même sur ces deux images, mais elles ont été prises à des instants différents. L'image B a été prise

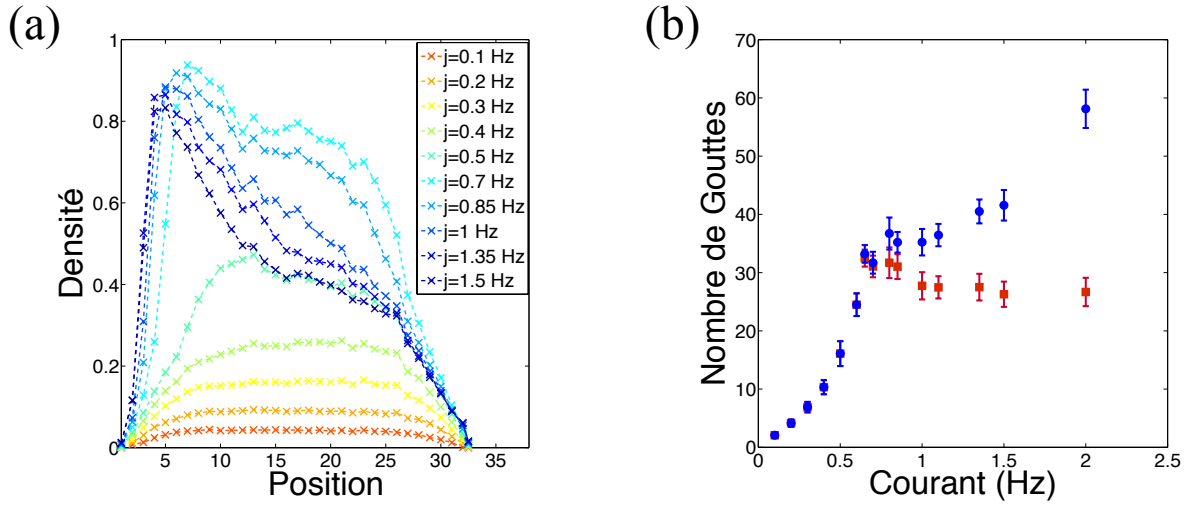


FIGURE 4.5: a) Profils de densité linéique moyennés spatialement sur chaque noeud du réseau et temporellement pendant 30 minutes. A noter  $j^* = 0,65\text{Hz}$ . b) Nombre de gouttes moyen en fonction du courant imposé. Les barres d'erreurs indique la variance de la mesure. Ronds bleus : nombre de gouttes dans l'ensemble du réseau. Carrés rouges : nombre de gouttes dans le canal central.

juste après l'augmentation du courant et l'image C a été réalisée trente secondes plus tard. Sur le cliché B, on peut deviner sur la fin du canal que le courant a effectivement été peu augmenté ; la densité au bord droit semble quasiment la même que pour la première image. Mais un bouchon s'est formé à l'entrée du canal. Cela a pour conséquence, comme on le voit sur l'image C un envahissement des autres canaux extérieurs du réseau par collision entre particules. Ces expériences tendent à montrer qu'il existe un courant maximum au-delà duquel un flot stationnaire homogène 1D de particules n'est plus supportable par le système.

La formation de ces bouchons se voit plus quantitativement sur la figure 4.5a qui décrit les profils de densité pour des courants supérieurs et inférieurs à  $j^*$ . Pour des valeurs de courant supérieures à  $j^* = 0.65\text{ Hz}$ , il y a formation d'un bouchon à l'entrée du canal. On voit aussi que pour les courants élevés ( $j > 1.5 \times j^*$ ), ces profils de densité semblent converger vers une valeur constante. Cela se voit aussi à travers le nombre de gouttes dans le canal central, représenté par les carrés rouges sur la figure 4.5b, qui reste relativement constant lorsqu'on augmente le courant en particule. On voit aussi cette transition localisée à  $j^*$  au niveau du nombre total de gouttes présentes dans le canal, représenté par les ronds bleus sur la figure 4.5b. Il ne suit pas la même variation avant et après  $j^*$ . Et surtout, la densité maximale observée pour ce courant critique est bien en dessous de la densité de contact,  $\rho(j^*) \sim 0.7 \ll 1$ .

Cette expérience nous amène à nous poser une question sur l'origine physique de ce cou-

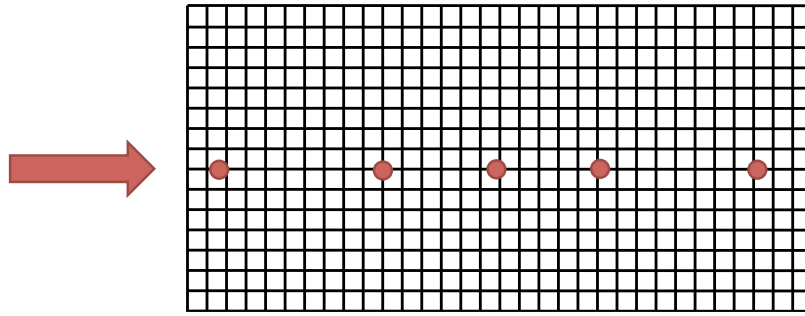


FIGURE 4.6: Réseau discret.

rant maximal :

**Pourquoi tous les trains de gouttes 1D de densité inférieure à 1 ne sont-ils pas solutions stationnaires de ce type d'écoulement ?**

Nous allons maintenant montrer comment les interactions hydrodynamiques bornent le courant et la densité.

### 4.3 Modélisation du problème

On ne cherche pas à modéliser spécifiquement les interactions obstacles/particules à l'échelle microscopique. Nous voulons trouver un modèle moins précis mais plus générique.

#### 4.3.1 Analogie électrostatique

Nous allons nous servir du travail présenté au chapitre 1 tiré de l'article de Schindler et Ajdari [39] qui considère que la présence d'une particule dans un canal induit une augmentation de résistance hydrodynamique du canal. Nous pouvons facilement construire un modèle discret de notre réseau, comme celui représenté sur la figure 4.6. Dans ce cas, un lien du réseau est un canal de résistance hydrodynamique  $R_0$ . On modélise alors la présence d'une goutte dans un lien du réseau comme cela :

$$R_{\text{lien}} = R_0 + n \times R_{\text{goutte}} \quad (4.1)$$

où  $R_{\text{goutte}}$  est la résistance attribuée à une particule. On écrit ces lois sur l'ensemble des liens du réseau. On y ajoute la conservation du débit à chaque noeud du réseau. A chaque

lien et chaque noeud correspond un indice  $i$ .

$$\begin{cases} v_i = R_i \Delta P_i \\ \sum_{\text{liens}} v_i = 0 \end{cases} \quad (4.2)$$

On obtient un modèle simple qui peut nous guider dans la compréhension de notre expérience. Ces équations nous permettent de trouver la vitesse du fluide sur le réseau, on rajoute l'hypothèse vérifiée expérimentalement ([75], [36]) que la vitesse des particules est proportionnelle à la vitesse du fluide :

$$v_{\text{goutte}} = \mu v_{\text{fluide}} \quad (4.3)$$

avec  $\mu$  un coefficient de mobilité constant.

Mais étant donné que les calculs sur réseau sont complexes mais surtout parce que nous voulons un modèle plus indépendant de la géométrie du réseau, nous avons proposé un modèle continu dérivé de cette approche discrète :

$$\begin{cases} \underline{v}_{\text{fluide}}(r) = -G(r) \underline{\nabla} P(r) \\ \underline{\nabla} \cdot \underline{v}_{\text{fluide}}(r) = 0 \\ v_{\text{goutte}} = \mu v_{\text{fluide}} \end{cases} \quad (4.4)$$

Et pour la conductance :

$$G(r) = G_0 \left[ 1 - b^2 \sum_{i=1}^N \delta(r - r_i(t)) \right] \quad (4.5)$$

Où les  $N$  gouttes sont localisées au temps  $t$  en  $r_i(t)$ . Avec cette description, la coupure spatiale de notre approximation continue est le diamètre  $D$  des gouttes. Le paramètre pertinent de cette description est **la longueur  $b$**  qui est une mesure des interactions hydrodynamiques entre particules dans ce système.

On utilise les conditions aux limites stipulant que la vitesse à l'infini est constante et selon l'axe du canal. On suppose un écoulement bouchon selon l'axe ( $Ox$ ). On obtient un système d'équations qui régit la dynamique du fluide :

$$\begin{cases} \underline{\nabla} \cdot (G \underline{\nabla} P) = 0 \\ \underline{v}^{\infty} = v_0 \underline{e}_x \end{cases} \quad (4.6)$$

Ce système d'équations présente une analogie avec un problème d'électrostatique bien connu, celui d'une particule diélectrique placée dans un champ électrique  $\underline{E}$  uniforme. Dans ce problème, on introduit le champ de déplacement électrique  $\underline{D}$  qui vérifie les équations :

$$\begin{cases} \underline{D} = \epsilon \underline{E} = -\epsilon \underline{\nabla} V \\ \underline{\nabla} \cdot \underline{D} = \rho_{\text{libres}} = 0 \end{cases} \quad (4.7)$$

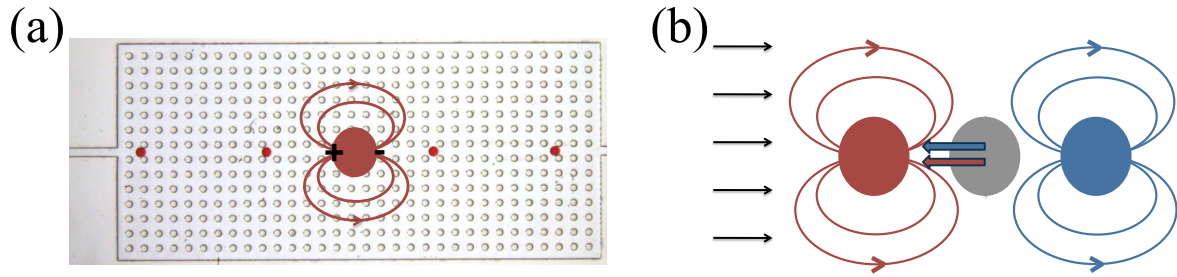


FIGURE 4.7: a) Schéma de la perturbation dipolaire au champ de vitesse du fluide induite par la présence d'une particule. b) Schéma des perturbations dipolaires induites par les particules en amont (rouge) et en aval (bleu) et leurs conséquences sur la particule grise. Les flèches indiquent que la présence des deux particules tend à diminuer la vitesse de la troisième.

A grande distance, la particule diélectrique peut être vue comme une perturbation locale de la constante diélectrique  $\epsilon = \epsilon_0(1 \pm b^2\delta(r))$ . On obtient le système d'équations :

$$\begin{cases} \nabla(\epsilon\nabla V) = \underline{0} \\ \underline{E}^\infty = -\epsilon_0\nabla V = E_0\underline{e}_x \end{cases} \quad (4.8)$$

On peut facilement déduire une analogie entre ces problèmes que l'on peut résumer de cette manière :

$$\begin{aligned} \underline{v} &\equiv \underline{E} \\ G &\equiv \epsilon \\ \nabla P &\equiv \nabla V \end{aligned} \quad (4.9)$$

Donc, ce problème est équivalent à la présence d'un diélectrique plongé dans un champ électrique uniforme. Dans ce cas, le diélectrique se polarise et crée une perturbation dipolaire au champ (se référer au livre de Jackson [76] pour plus de détails). On voit à ce stade qu'une goutte se comporte comme un dipôle de source polarisé par l'écoulement selon l'axe d'écoulement, comme cela est reproduit sur la figure 4.7a. Cela nous permet de comprendre qualitativement le ralentissement hydrodynamique avec la densité. La figure 4.7b représente trois gouttes alignées selon la direction de l'écoulement. On voit que les deux perturbations induites sur la particule du centre par les deux autres tendent toutes les deux à diminuer la vitesse de la particule centrale. La force de cette perturbation diminue avec la distance. **La vitesse d'un cristal 1D de gouttes va diminuer lorsque sa densité va augmenter.**

Ainsi, nous avons compris qualitativement comment les interactions hydrodynamiques agissent sur la vitesse des particules. Nous allons maintenant calculer ces interactions pour avoir une interprétation quantitative de ce courant maximum vu expérimentalement.

### 4.3.2 Relation constitutive de l'écoulement

On peut effectuer une analyse perturbative de ce problème pour calculer  $v_{\text{dip}}$ , la perturbation à la vitesse induite sur le fluide par une particule,  $v_{\text{goutte}} = v_{\text{goutte}}^{\infty} + \mu v_{\text{dip}}$ , où  $v_{\text{goutte}}^{\infty}$  représente la vitesse d'une particule isolée. On considère une particule d'indice  $i$  localisée à l'instant  $t$  en  $r_i(t)$  orienté selon l'axe  $(Ox)$ , qui est la direction de l'écoulement.

On calcule le terme d'ordre 0 en  $b^2$  pour la pression, correspondant au cas où la présence de la particule ne modifie pas dans le champ de conductance. On réutilise les conditions aux limites et on suppose de nouveau un écoulement bouchon selon l'axe  $(Ox)$ . Cela revient à écrire une loi de Darcy (voir chapitre 1).

$$\begin{cases} \nabla (G \nabla P) = G_0 \nabla^2 P^{(0)} = 0 \\ \underline{v}^{\infty} = G_0 \underline{\nabla} P^{(0)} = v_0 \underline{e}_x \end{cases} \quad (4.10)$$

On effectue ensuite ce calcul à l'ordre 1 en  $b^2$ . L'équation précédente s'écrit alors :

$$\nabla \left[ G_0 (1 + b^2 \delta(r - r_i(t))) \times \nabla (P^{(0)} + P^{(1)}) \right] = 0 \quad (4.11)$$

Or  $\nabla^2 P^{(0)} = 0$  d'après l'équation 4.10; et  $\left[ b^2 \delta(r - r_i(t)) \nabla P^{(1)} \right]$  est un terme d'ordre 2. On obtient finalement :

$$\nabla^2 P^{(1)} + b^2 \nabla \left[ \delta(r - r_i(t)) \nabla P^{(0)} \right] = 0 \quad (4.12)$$

Soit :

$$\nabla^2 P^{(1)} = - \frac{b^2 v_{\text{fluide}}^{\infty}}{G_0} \nabla (\delta(r - r_i(t))) \quad (4.13)$$

On peut définir la vitesse du dipole  $v_{\text{dip}}^{(1)}$  comme la vitesse induite par la perturbation au premier ordre par la présence de cette particule. On considère ici uniquement la perturbation le long de l'axe d'écoulement  $(Ox)$ . On obtient :

$$\nabla \left( v_{\text{dip}}^{(1)}(r, t) \right) \Big|_{\text{mobile}} = b^2 v_{\text{fluide}}^{\infty} \partial_x [\delta(r - r_i(t))] \quad (4.14)$$

On peut ensuite résoudre cette équation en utilisant le théorème de Gauss dans le référentiel de la goutte en mouvement. Cela nous permet de calculer la vitesse induite par la présence d'une particule localisé en  $x$  à l'instant initial.

$$v_{\text{dip}}^{(1)}(r, t) \Big|_{\text{mobile}} = \frac{b^2}{2\pi} v_{\text{fluide}}^{\infty} \partial_x \left( \frac{1}{x - x_i} \right) \quad (4.15)$$

Si on remplace maintenant dans le référentiel fixe par rapport au canal, on obtient pour la perturbation de la vitesse au 1er ordre :

$$v_{\text{dip}}^{(1)} \Big|_{\text{fixe}} = \frac{b^2}{2\pi} (v_{\text{fluide}}^{\infty} - v_{\text{goutte}}) \left( \frac{-1}{(x - x_i)^2} \right) \quad (4.16)$$

On reste dans ce référentiel fixe pour la suite du calcul. La perturbation de l'écoulement induite par la présence d'une particule engendre donc des interactions hydrodynamiques



longues portées avec une dépendance en  $1/r^2$ .

On somme maintenant les contributions  $v_{\text{dip}}$  induite par des particules situées le long de l'axe ( $Ox$ ) pour calculer la vitesse de la  $i^{\text{ème}}$  goutte ( $v_{\text{goutte}}^i$ ) subissant les perturbations de l'ensemble infini des autres particules. Les perturbations dipolaires ne sont pas additives de paires, mais cette somme est valide pour l'ordre 1 en  $b^2$ . Il ne s'agit pas d'une hypothèse supplémentaire.

$$v_{\text{goutte}}^i = v_{\text{goutte}}^{\infty} + \mu \sum_{j \neq i} v_{\text{goutte}}^{(1)}(r_i - r_j) \quad (4.17)$$

On effectue le calcul pour un cristal 1D de particules équiréparties le long de l'axe ( $Ox$ ). Ce calcul correspond à ce qui a été observé expérimentalement. Les particules sont toutes à une distance  $d$  de leurs deux voisines. On suppose par ailleurs que les gouttes ont toutes la même vitesse (vérifié expérimentalement).

$$v_{\text{goutte}}^i = v_{\text{goutte}}^{\infty} + \mu \sum_{i \neq j} \frac{b^2}{2\pi} (v_{\text{fluide}}^{\infty} - v_{\text{goutte}}) \left( \frac{-1}{(kd)^2} \right) \quad (4.18)$$

On suppose le cristal formé par ces gouttes de taille infinie, ce qui nous permet de calculer exactement cette somme.

$$v_{\text{goutte}}^i = v_{\text{goutte}}^{\infty} - \mu \frac{b^2}{2\pi d^2} \frac{\pi^2}{3} (v_{\text{fluide}}^{\infty} - v_{\text{goutte}}) \quad (4.19)$$

Or  $v_{\text{fluide}}^{\infty} - v_{\text{goutte}} = v_{\text{fluide}}^{\infty} - v_{\text{goutte}}^{\infty}$  au premier ordre en  $b^2$ . Et par définition  $v_{\text{goutte}}^{\infty} = \mu v_{\text{fluide}}^{\infty}$ , ce qui conduit à :

$$v_{\text{goutte}}^i = v_{\text{goutte}}^{\infty} - \mu v_{\text{fluide}} \frac{b^2}{2\pi d^2} \frac{\pi^2}{3} (1 - \mu) \quad (4.20)$$

$$v_{\text{goutte}}^i = \frac{v_{\text{goutte}}^{\infty}}{1 + \frac{\pi}{6}(1 - \mu)(b/d)^2} \quad (4.21)$$

On en déduit la relation constitutive qui relie le courant en particule et la densité en particule, avec comme définition  $\rho = D/d$ ;  $D$  étant le diamètre des particules.

$$\mathbf{j} = \frac{\rho \mathbf{v}_{\text{goutte}}^{\infty}}{1 + \frac{\pi}{6}(1 - \mu)(\mathbf{b}/\mathbf{D})^2 \rho^2} \quad (4.22)$$

Nous allons maintenant comparer cette relation constitutive avec nos expériences et en déduire les caractéristiques de cette transition d'invasion.

### 4.3.3 Transition d'invasion

La vitesse du fluide et la vitesse d'une goutte isolée,  $v_{\text{goutte}}^{\infty}$ , peuvent être mesurées de manière indépendante et sont donc des valeurs expérimentales. Ainsi seul  $b$  est un paramètre libre de l'approximation représentée en rouge sur la figure 4.8. On obtient à partir

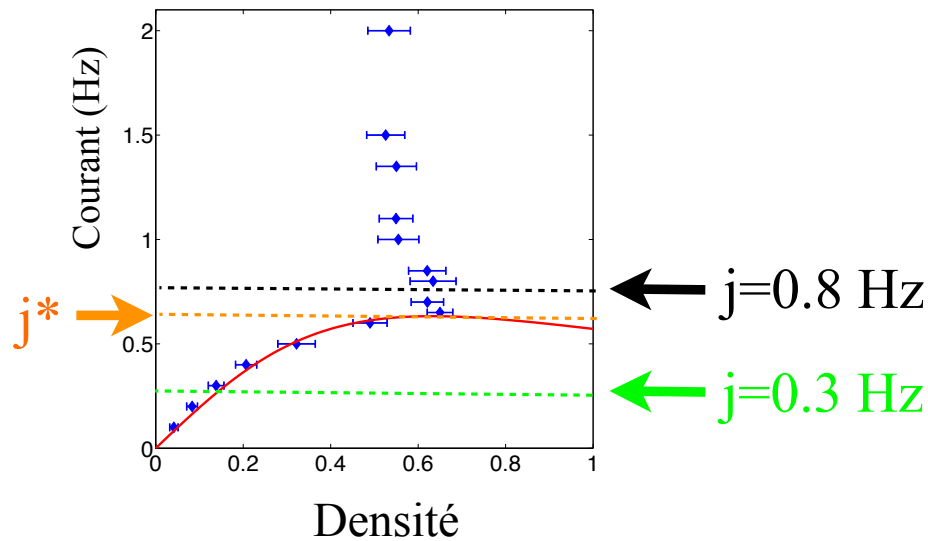


FIGURE 4.8: Courant imposé en fonction de la densité 1D dans la ligne centrale. Ligne rouge : Prédiction théorique de l'équation 4.22. Les lignes pointillées horizontales correspondent aux expériences effectuées où on impose la courant. Pour  $j = 0,8\text{Hz} > j^*$  (en pointillé noir), il n'existe pas de solution stationnaire.

de l'approximation des données expérimentales pour le rapport entre notre longueur d'interaction  $b$  et le diamètre des particules  $D$  :  $b/D \sim 1,8$ . Il s'agit d'une longueur environ égale à deux fois la maille du réseau, donc de longueur microscopique. Mais cette valeur est relativement importante car il s'agit du petit paramètre de notre analyse perturbative. Commentons maintenant l'accord théorie/expérience pour voir la pertinence de ce modèle. Premièrement il n'y a qu'un seul paramètre d'approximation, la longueur  $b$ , et on peut conclure que l'accord entre la théorie et l'expérience est bon. Cela valide le calcul perturbatif présenté précédemment, bien qu'il ne s'agisse que d'une approximation de la solution. Nous avons seulement calculé le terme du premier ordre sans savoir a priori quelle est sa prépondérance par rapport aux termes du développement. Nous avons par ailleurs supposé le cristal de taille infinie. C'est uniquement l'accord avec l'expérience qui nous permet de conclure.

Ensuite, l'expression de la **fonction de courant admet un maximum** pour une valeur de densité  $\rho(j^*) < 1$ , comme cela se voit sur la figure 4.8. Cela signifie qu'il n'existe pas de solution stationnaire stable pour un courant supérieur à la valeur critique  $j^*$ . On comprend le scénario d'invasion du réseau. Lorsqu'on essaie d'imposer un courant  $j > j^*$ , il n'y plus de solution stationnaire stable ; le système ne peut supporter un tel courant et il se forme alors un bouchon. Ce bouchon va induire un envahissement du réseau par contact stérique. La figure 4.8 permet de bien comprendre la réponse du système. Dans nos expériences, nous imposons le courant, représenté sur l'axe des ordonnées. Lorsque ce courant est supé-

rieur à  $j^*$ , il n'y a plus de solution stationnaire comme le montre plus clairement la figure. Le ralentissement hydrodynamique, dû aux interactions hydrodynamiques, est tel que pour un courant  $j > j^*$ , une particule n'a pas le temps entre deux injections ( $\Delta\tau_{\text{injection}} = 1/j$ ) de parcourir une distance égale à son diamètre. Il se forme un bouchon et par collision le réseau est envahi.

La densité 1D maximale que l'on peut atteindre de cette manière est  $\rho(j^*)$  que l'on peut calculer à partir de l'expression 4.22.

$$\rho(j^*) = \frac{1}{\sqrt{\frac{\pi}{6}(1-\mu)(b/D)^2}} \sim 0,7 \quad (4.23)$$

On a quantitativement compris pourquoi cette chaîne 1D de particules en écoulement est instable pour des densités inférieures à 1.

Nous avons mis en lumière une caractéristique importante de particules en écoulement dans des réseaux microfluidiques : la présence d'un courant maximum. Mais l'approche employée pour dériver l'expression 4.22 est valide *a priori* pour des systèmes génériques. En effet, notre approche est indépendante de la géométrie du canal mais aussi des caractéristiques des particules. Nous allons maintenant vérifier la robustesse de cette approche pour d'autres situations fluidiques.

## 4.4 Robustesse des résultats

Notre modélisation du problème est indépendante de la forme et de la dimension des canaux ; nous allons vérifier expérimentalement cette proposition pour tester les limites de notre modèle.

### 4.4.1 Influence de la dimension transverse du réseau

D'autres expériences ont été réalisées en changeant uniquement la dimension transverse du réseau, qui cette fois-ci a pour dimension  $3 \times 32$ , comme le montre la figure 4.9. Les expériences sont conduites de la même manière : attente de la fin du transitoire puis 20 minutes d'expériences pour des courants d'injection variant entre 1 et 4.5 Hz. Le diamètre des gouttes est dans cette expérience  $D = 180 \pm 10 \mu\text{m}$ . Les résultats moyennés sur la durée totale de l'expérience sont présentés sur la figure 4.10. Nous voyons sur les profils de densité deux régimes distincts. Le premier, correspondant à des courants inférieurs à  $j^*$ , où les profils de densité sont plats le long du canal. Vu les dimensions transverses faibles du



FIGURE 4.9: Dispositif expérimental de gouttes d'eau colorée s'écoulant dans de l'hexadécane + Span 80 (3 % en masse). Le pas du réseau est de  $300 \mu\text{m}$  et le diamètre des obstacles circulaires est de  $150 \mu\text{m}$ . La vitesse moyenne d'une particule isolée est de  $1,1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ .

canal par rapport à l'expérience précédente, on voit que la zone stationnaire du canal est rapidement atteinte.

Ensuite, sur la figure 4.10b est représenté la dépendance de la densité en fonction du courant en particule. Il est aussi reporté sur cette courbe une approximation des données expérimentales par la formule 4.22, en trait rouge. Cette approximation est moins bonne que pour les données expérimentales précédentes. En effet, les interactions hydrodynamiques sont écrantées pour des valeurs supérieures à la dimension transverse du canal [24]. Une approximation linéaire est donc assez fidèle pour les premières mesures, ce qui est représenté par un trait pointillé noir. Il n'est pas étonnant que la courbe ne soit plus linéaire pour les faibles densités. Mais là encore nous pouvons noter que la déstabilisation de la chaîne 1D de gouttes se fait pour une densité  $\rho(j^*) = 0.65$ . Cette déstabilisation existe bien pour une valeur faible en densité, signe de ce courant maximum,  $j^*$ .

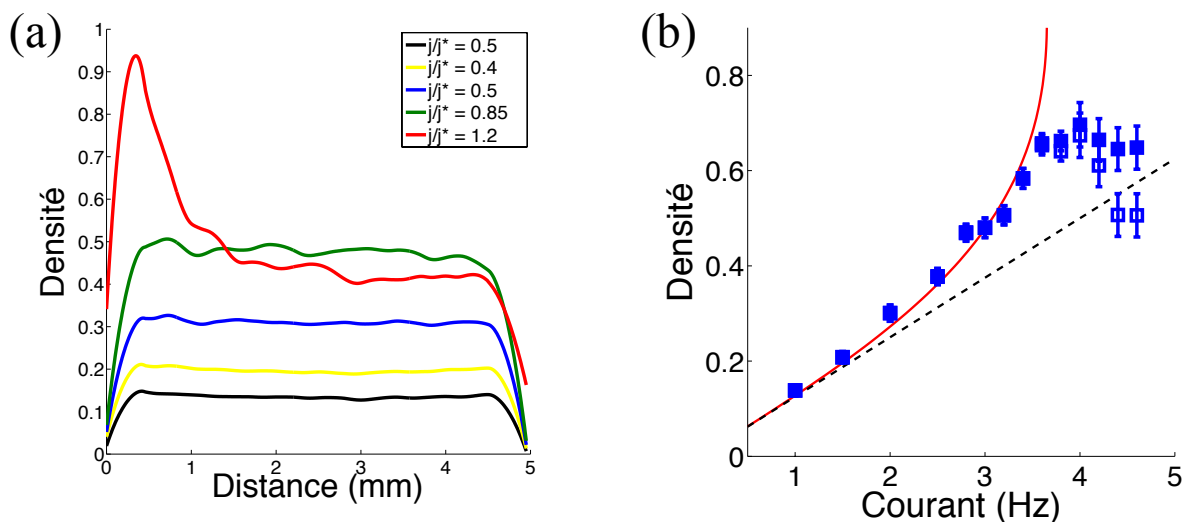


FIGURE 4.10: a) Profils de densité moyennés temporellement pendant 20 minutes. b) Nombre de gouttes en fonction du courant imposé. Carrés bleus pleins : Nombre total de gouttes dans le réseau. Carrés bleus vides : nombre de gouttes dans le canal central. Ligne pointillée noire : approximation linéaire à partir de la vitesse d'une goutte isolée. Ligne pointillée rouge : approximation théorique à partir de l'expression 4.22.

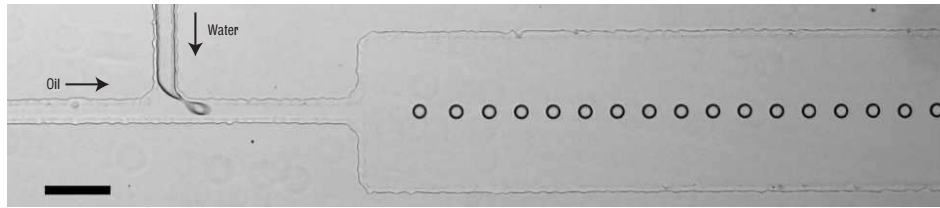


FIGURE 4.11: Dispositif microfluidique utilisé par Beatus *et al* [23] de gouttes d'eau dans de l'huile. La hauteur du canal est de  $10 \mu\text{m}$ , la largeur des particules est de  $35 \mu\text{m}$ .

La phénoménologie est donc bien indépendante de la dimension transverse du canal. On peut tout de même noter que la longueur d'interaction  $b$  est légèrement plus grande dans ce cas précis,  $b/D \sim 2$ . Mais une comparaison directe est difficile à donner car la taille des particules n'est pas exactement la même dans les deux expériences. La taille des particules est plus grande dans l'expérience où le réseau est moins étendu. Et surtout notre approximation *via* cette formule est peu précise. Une interprétation sur l'évolution de  $b/D$  en fonction uniquement de ces expériences ne peut pas être donnée.

J'ai aussi sondé l'influence de la dimension transverse du canal sur la perturbation induite par la présence d'une particule, grâce à un code numérique que je présenterai dans le chapitre 6. Il en ressort que pour une particule identique, la perturbation induite est plus forte, proche de la particule et plus faible loin de la particule, lorsqu'on diminue cette dimension transverse. Nous verrons cela plus en détail dans le chapitre consacré à cet étude numérique. Cet effet peut qualitativement se comprendre en voyant cette longueur  $b$  comme l'amplitude de la perturbation, ou comment une particule peut localement "boucher" un canal. Pour une dimension transverse faible, le rapport  $W/D$  devient non négligeable et cette longueur  $b$  doit augmenter car la particule bouche une fraction importante du canal. Cette image permet de qualitativement comprendre cette tendance.

#### 4.4.2 Influence de la présence d'obstacles

Nous allons maintenant voir si notre modélisation se vérifie expérimentalement pour des canaux fluidiques sans obstacles, c'est-à-dire une cellule de Hele-Shaw. Notre modèle, qui suppose une augmentation locale de conductance par la présence d'une particule dans un écoulement potentiel, est indépendant de la présence d'obstacles. Une cellule de Hele-Shaw peut être décrite par notre système d'équations ; l'écoulement étant potentiel au sein de cette chambre fluide ce qui est le point clé. Mais on peut raisonnablement se demander si les interactions hydrodynamiques que nous avons mis en avant dans les deux expériences précédentes ne proviennent pas simplement de la présence d'obstacles. Des expériences dans des cellules de Hele-Shaw vont nous apporter la réponse. Ces expériences

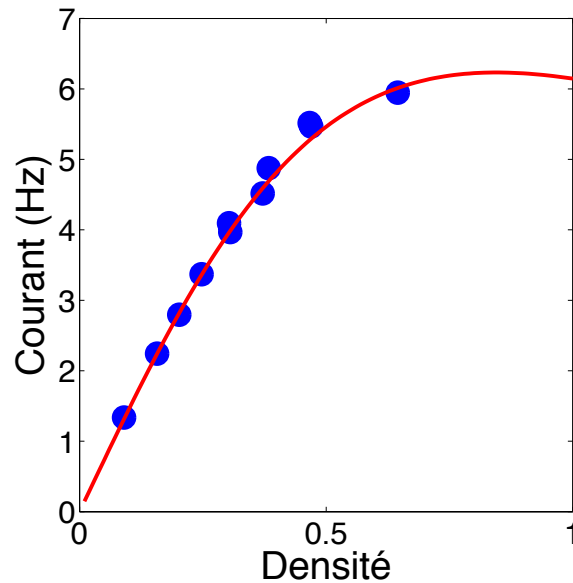


FIGURE 4.12: Données expérimentales, retravaillées à partir de [23], du courant en gouttes en fonction de la densité du cristal 1D. La ligne rouge représente la meilleure approximation de la formule théorique 4.21 ; 1 seul paramètre d'approximation,  $b/D = 1,3$ .

ont été effectuées dans l'équipe de Roy Barziv ([23], [24]).

Il est nécessaire de faire ici un parallèle entre mon travail et celui de ce groupe. Dans leurs articles, les auteurs ont étudié la perturbation induite par un objet cylindrique, une goutte d'eau, dans une cellule de Hele-Shaw, comme on le voit sur la figure 4.11. Ils ont développé pour leur expérience une approche spécifique aux perturbations induites dans les cellules de Hele-Shaw (calcul détaillé dans le chapitre 1) et qui correspond parfaitement à leur cas particulier. Leur approche ne peut pas permettre un calcul en présence de nombreux obstacles alors que notre version repose juste sur la perturbation locale au champ de conductance dans un écoulement potentiel, ce qui est valide dans les deux cas. Notre approche est de ce point de vue plus générale. Aussi, ils se sont intéressés à la stabilité linéaire d'un cristal 1D de gouttes, et non pas au régime d'existence d'états cristallins stationnaires. D'un point de vue expérimental, ils reportent eux aussi un ralentissement hydrodynamique en lien avec la densité. J'ai retravaillé leurs données pour mettre en avant cet effet sur la figure 4.12. L'accord entre théorie et expérience est excellent. Même si cela n'a pas été commenté au regard de notre travail postérieur au leur, cela met en lumière la présence de ce courant maximum. Ils présentent à la fin de leur article [23] des cas de cristaux 1D qui leur semblent pathologiques, alors qu'en réalité, ils essayaient de former des cristaux unidimensionnels stables à des valeurs de courant supérieures à ce courant critique,  $j^*$ . Les clichés de ces expériences sont donnés sur la figure 4.13.

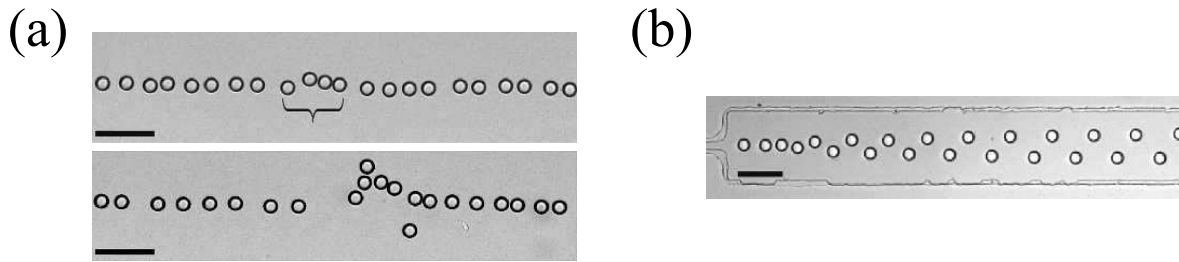


FIGURE 4.13: Cristal 1D de gouttes s'écoulant à une densité supérieure à  $j^*$ . Extrait de [23]. a) On voit sur la cliché du haut que, localement, le courant est supérieur à  $j^*$ . Cela crée une déstabilisation du cristal comme on le voit sur le cliché du bas. b) L'injection de particules se fait à un courant supérieur à  $j^*$  ; il ne se forme pas de cristal 1D stationnaire.

La phénoménologie est donc bien indépendante de la présence d'obstacles. La non monotonie de la fonction de courant n'est pas le résultat d'interactions spécifiques gouttes / obstacles. La longueur d'interaction  $b$  est plus petite dans le cas où il n'y pas d'obstacles. Mais les auteurs ne donnent pas cette valeur clairement car ils ne l'ont pas calculé dans leur situation ; j'ai fait un ajustement de leur donnée pour trouver  $b/D \sim 1,3$ . Il faut être raisonnable quant à l'interprétation. Là encore, une comparaison directe est difficile à donner car la taille des particules n'est pas exactement la même dans les deux expériences et les dimensions des canaux sont différentes.

#### 4.4.3 Influence de la nature et de la forme des particules

Nous avons aussi utilisé pour d'autres expériences des particules solides fabriquées *in situ* (voir chapitre 3 pour la technique et le chapitre 7 pour des résultats spécifiques obtenus à partir de ce procédé). Je reporte ici une expérience pour laquelle on fait s'écouler une chaîne de 10 particules solides dans une cellule de Hele-Shaw, comme on le voit sur la figure 4.14.

Cette expérience est un peu différente des trois précédentes car on n'étudie plus ici une chaîne infinie de particules. Les distances entre les particules évoluent au cours du temps car elles ne ressentent pas toutes les mêmes interactions ; elles n'ont pas toutes les mêmes voisins. Ainsi, il se forme un doublet à l'arrière et les particules à l'avant s'évaporent. Cela voit sur la figure 4.15a où nous avons représenté la position des particules en fonction du temps dans le référentiel de la dernière particule.

On mesure à chaque instant la distance moyenne entre une particule et ses deux proches voisines et on mesure sa vitesse instantanée. Cela est représenté sur la figure 4.15b. Le code couleur indique le nombre d'occurrence trouvé pour une distance intervoisin donnée. Plus

le point est foncé, plus on peut avoir confiance sur cette mesure.

Ce graphe nous montre simplement qu'il y a là aussi un ralentissement hydrodynamique induit par la présence de ces particules. Ce ralentissement peut être interpréter comme provenant de la modification locale de la conductance du milieu dans un écoulement potentiel. Mais, cette mesure est difficile à réaliser car pour avoir un effet vraiment observable, il faut que les particules puissent s'écouler sur environ 200 fois leur diamètre, c'est à dire 2 cm dans ce cas. Or les techniques de lithographie ne permettent pas d'avoir des précisions sur les hauteurs de canaux sur des distances aussi élevées. Elles sont donc bloquées rapidement à un endroit du canal où la hauteur est plus faible (voir chapitre 3 pour cette discussion). On ne peut pas non plus diminuer la taille des particules car le montage dont nous disposons ne permet pas de fournir assez de lumière homogène pour avoir une réticulation homogène.

On peut simplement conclure que la phénoménologie est bien indépendante de la nature des particules car on a pu rapporter un ralentissement hydrodynamique pour des particules solides. Mais ce ralentissement est très faible, conduisant à une densité critique  $\rho(j^*) > 1$ . En effet, comme cela a été signalé dans le chapitre 3, il est nécessaire que la hauteur des particules ne soit pas trop grande car sinon elles se bloquent. Il existe pour ces particules un film de liquide d'épaisseur relativement grande (de l'ordre de plusieurs microns) entre les particules et les parois du canal. Ce film lubrifiant dans le cas des gouttes est bien inférieur au micromètre [77]. Le ralentissement hydrodynamique est donc beaucoup plus faible dans le cas de ces particules solides. Mais la phénoménologie reste la même comme on le verra plus en détail dans le chapitre 7, dédié à cette expérience.

Je tiens aussi à faire remarquer ici que nous avons observé expérimentalement un ralentissement hydrodynamique pour des particules non pas circulaires mais carrés. Peu de mesures ont été réalisées, ce qui ne me permet pas de présenter un résultat quantitatif ; mais cela est qualitativement similaire quelque soit la forme des particules.

Pour résumer, nous avons réussi à quantitativement décrire le ralentissement hydrodynamique induit par l'écoulement de particules confinées dans des canaux fluidiques en écoulement potentiel. Nous avons réussi à mettre en évidence la présence d'un courant critique au-delà duquel aucune solution stationnaire n'existe. Le caractère générique de notre

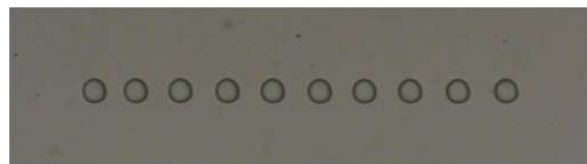


FIGURE 4.14: Canal microfluidique de hauteur  $h = 55\mu\text{m}$  dans lequel on a fabriqué *in situ* 10 particules de diamètre  $D = 100\mu\text{m}$  le long de l'axe d'écoulement du liquide.



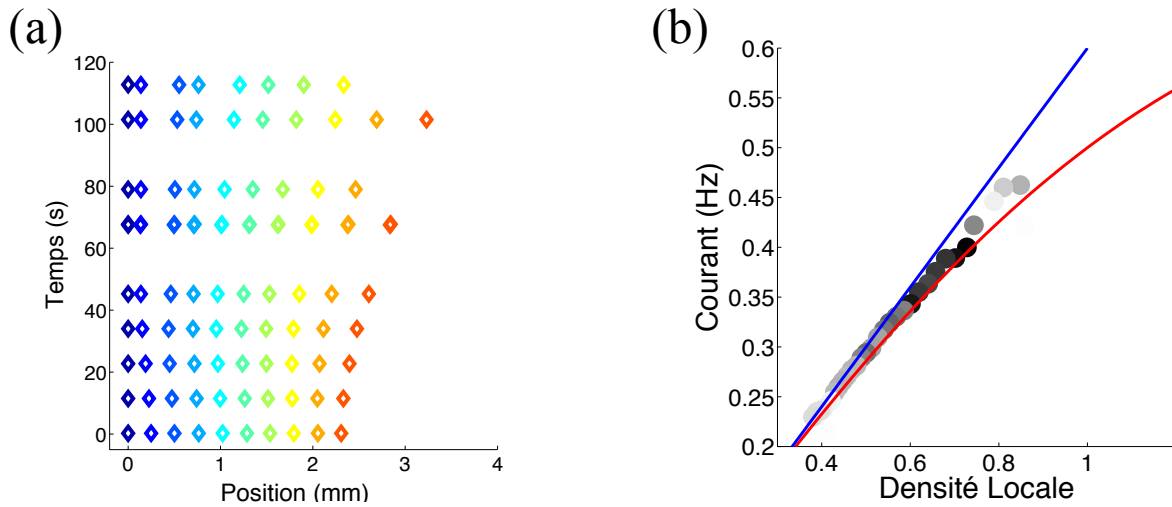


FIGURE 4.15: Données expérimentales. a) Position des particules en fonction du temps. Le code couleur permet de repérer facilement les particules. Ces positions sont données dans le référentiel de la dernière particule située en  $x = 0$ . b) Courant instantané de particules en fonction de la densité locale, moyennée sur les proches voisins,  $\rho_{\text{local}} = \frac{2D}{d_{i+1} + d_{i-1}}$ . Le code couleur indique le nombre d'occurrence pour un même distance intervoisin. Plus la couleur est sombre, plus la mesure a été faite un nombre important de fois. Trait Bleu : approximation linéaire de ces données. Trait rouge : approximation à partir la relation constitutive 4.22 ; 1 seul paramètre d'approximation,  $b/D \sim 0,4$

modèle, qui repose uniquement sur une diminution locale de conductance induite par le présence de particules, a été vérifié à travers différentes expériences hydrodynamiques.

Mais une étude plus systématique pourrait s'intéresser dans un même canal à l'influence de certains paramètres sur la longueur d'interaction entre particules,  $b$ . Les propriétés intéressantes à sonder sont :

- La taille des particules.
- Le nombre Capillaire.
- L'épaisseur du film de liquide qui confine les particules.

Ce travail pourrait aboutir à une meilleure compréhension des propriétés de blocage de certaines particules.

## 4.5 Au delà de l'hydrodynamique

La phénoménologie de la formation de bouchons provient de la non-monotonie de la fonction de courant et donc de la présence d'un maximum. Il faut que la vitesse des par-

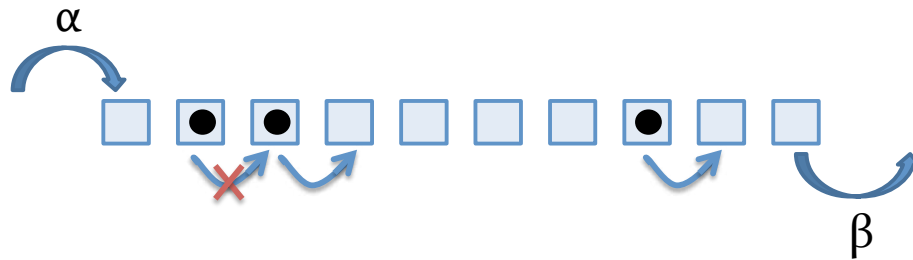


FIGURE 4.16: Schéma du modèle de physique statistique Totally ASymmetric Exclusion Process (TASEP). Les particules ne peuvent se déplacer que dans une direction avec une probabilité 1 si personne n'est devant et 0 sinon. Cette probabilité est égale à  $\alpha$  et  $\beta$  à l'entrée et à la sortie de ce réseau 1D.

ticules décroisse avec la densité. Si cette décroissance est suffisamment forte, le maximum de la fonction de courant est atteint pour densité faible, inférieure à 1. Ceci est générique au-delà de l'hydrodynamique. C'est ce que je vais illustrer dans cette section.

## 4.5.1 Modèle d'exclusion

### 4.5.1.1 Définition

Nous avons présenté dans les parties précédentes de ce chapitre une expérience 1D de particules en interaction, problème générique à de nombreux systèmes physiques. Le processus d'exclusion simple est un modèle théorique de physique statistique traitant des interactions de particules 1D (chapitre 4 de la thèse de C. Enaud [78] pour une bonne introduction ou [79] pour plus de détails). Il s'agit d'un cas particulier de gaz sur réseau, où les particules font des sauts de pas 1 et n'ont pas d'autres interactions que la règle d'exclusion qui interdit que deux particules se trouvent au même instant sur le même site. Il existe différents modèles d'exclusion où les taux de saut d'une case à l'autre sont plus ou moins biaisés par la direction privilégiée choisie. Tous ces modèles sont des modèles importants de la physique statistique hors d'équilibre car ils combinent simplicité du modèle permettant l'obtention de résultats exacts, et complexité des propriétés observées : le processus d'exclusion simple présente en effet un comportement macroscopique non trivial que l'on retrouve de manière générique dans les systèmes hors d'équilibre plus réalistes. A titre d'exemple, on retrouve des systèmes avec transitions de phase [80] ou chocs [81], et ce, même en une dimension.

Pour le modèle TASEP (Totally ASymmetric Exclusion Process), les particules ne peuvent se déplacer que dans un sens avec une probabilité 1 si la case suivante est libre et 0 si elle est occupée (voir figure 4.16 pour une image plus claire). Les probabilités d'injection et d'éjection du réseau 1D, nommées  $\alpha$  et  $\beta$ , sont comprises entre 0 et 1. Différentes méthodes

de mises à jour existent, mais aboutissent au même résultat. Considérons une mise à jour avec tirage aléatoire. A chaque pas de temps, une case est tirée au sort. Si personne n'est devant, on avance de 1, sinon la particule reste à la même place. Si on tire la première (resp. dernière) case, il y a une probabilité  $\alpha$  (respectivement  $\beta$ ) que la case soit mise à jour.

Malgré la simplicité de ces modèles, nous allons voir s'ils permettent de mettre en avant cette non monotonie de la fonction de courant. Nous cherchons à voir comment évolue la vitesse des particules en fonction du taux d'occupation du réseau (densité) et si cela implique bien la même phénoménologie. Pour cela, nous allons résoudre le TASEP en champ moyen pour pouvoir comparer cette approche à nos mesures expérimentales.

#### 4.5.1.2 Résolution en champ moyen

On considère la  $i^{\text{ème}}$  particule sur un réseau 1D de taille  $N$ , la fonction  $\rho_i(t)$  représente la présence de la particule à la case  $i$  à un instant  $t$ . On considère un tirage aléatoire comme règle de mise à jour (la particule à un instant  $t$ , à une probabilité  $1/(N+1)$  d'être mise à jour). La conservation de la masse s'écrit :

$$\langle \rho_i(t+1) \rangle = \langle \rho_i(t) \rangle + \frac{1}{N+1} [\langle \rho_{i+1}(t)\rho_i(t) \rangle - \langle \rho_i(t) \rangle + \langle \rho_{i-1}(t) \rangle - \langle \rho_i(t)\rho_{i-1}(t) \rangle] \quad (4.24)$$

On va résoudre cela en considérant le courant de particule indépendant du temps,  $\langle \rho_i(t) \rangle = \rho_i$ , et en supposant tous les états comme décorrélés,  $\langle \rho_i(t)\rho_j(t) \rangle = \langle \rho_i(t) \rangle \times \langle \rho_j(t) \rangle$ . Soit :

$$\begin{cases} \rho_i - \rho_i\rho_{i+1} = \rho_{i-1} - \rho_{i-1}\rho_i \\ \rho_1 - \rho_1\rho_2 = \alpha(1\rho_1) \\ \beta\rho_N = \rho_{N-1} - \rho_N\rho_{N-1} \end{cases} \quad (4.25)$$

Ce qui aboutit à :

$$\rho_{i+1} = 1 - \frac{\rho_{i-1} - \rho_i\rho_{i-1}}{\rho_i} = 1 - \frac{j}{\rho_i} \quad (4.26)$$

Avec  $j$  le courant en particule. On obtient une suite que l'on peut calculer. Il existe trois domaines distincts pour lesquelles cette suite va être stable ou instable. Cette suite peut avoir trois types d'états stationnaires différents, en fonction des valeurs des paramètres  $j$ ,  $\alpha$  et  $\beta$ . On peut tracer un diagramme de phase en fonction du taux d'injection et d'éjection, figure 4.17. Ces résultats champ moyen sont qualitativement similaires à ceux obtenus par un calcul exact non présenté ici. Ce qu'il est intéressant de remarquer sur ce diagramme est la présence d'une phase de courant maximum. La fonction de courant, représentée sur la figure 4.17b, admet un maximum à  $j = 1/4$  pour une densité,  $\rho(j^*) = 1/2$ . Si on cherche à imposer un courant supérieur, il n'existe pas de solutions stationnaires et il se forme un bouchon à l'entrée du réseau, ce qui est similaire à nos expériences. Ainsi cette phase de courant maximum observée expérimentalement dans nos expériences microfluidiques

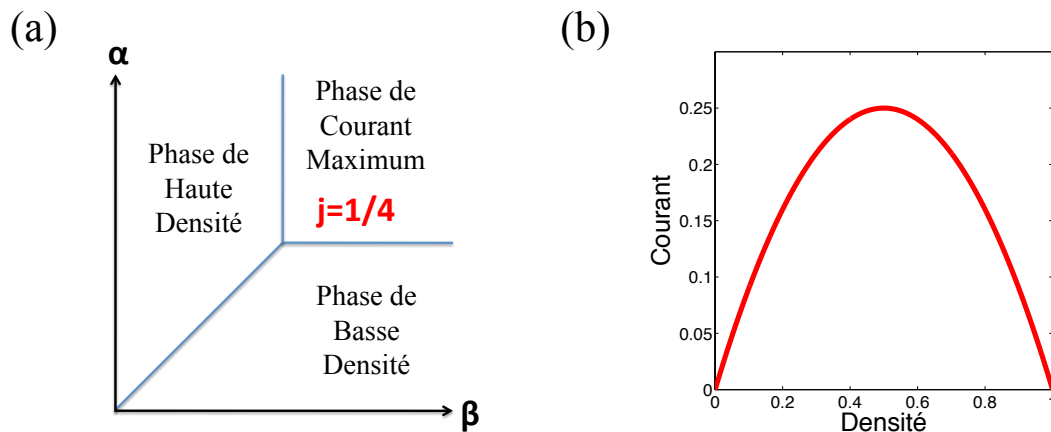


FIGURE 4.17: a) Diagramme de phase du TASEP mettant en avant un phase de courant maximum ainsi que deux autres phases, dépendant des valeurs de  $\alpha$  et  $\beta$ . b) Fonction de courant solution du modèle TASEP,  $j = \rho(1 - \rho)$ .

est quelque chose de général au delà de l'hydrodynamique. Elle émerge dès que les interactions entre particules sont suffisantes, c'est-à-dire que la vitesse décroît suffisamment fortement avec la densité.

Notre travail peut alors être vue comme une réalisation expérimentale de ce type de modèle. La différence entre ces modèles et nos expériences est que les interactions dans le cas de ces modèles sont de courte portée (une case) et fortes (de type coeur dur) tandis que nos gouttes interagissent de manière moins forte mais plus longue portée (avant et arrière).

Ces types de modèle d'exclusion ont aussi permis une analyse du trafic routier. C. Appert-Rolland a notamment animé une groupe de travail sur cette thématique [82]. Plutôt que d'étudier l'apport de tels modèles à la compréhension du trafic routier, nous allons directement chercher les caractéristiques du trafic réel pour essayer de faire ressortir des points de convergence avec notre travail sur les gouttes en interaction hydrodynamique sous écoulement.

#### 4.5.2 Trafic réel

Je ne suis pas un expert du trafic routier mais j'ai cherché les analogies qui pouvaient exister entre des gouttes en interaction hydrodynamique et des personnes dans des situations de trafic (routier, piétons...). Je me suis notamment appuyé sur une revue relatant de nombreuses expériences [83].

Dans un premier temps, je me suis plus intéressé aux valeurs expérimentales de débit mesurées sur les autoroutes. Ces mesures sont faites grâce à des boucles magnétiques sous la

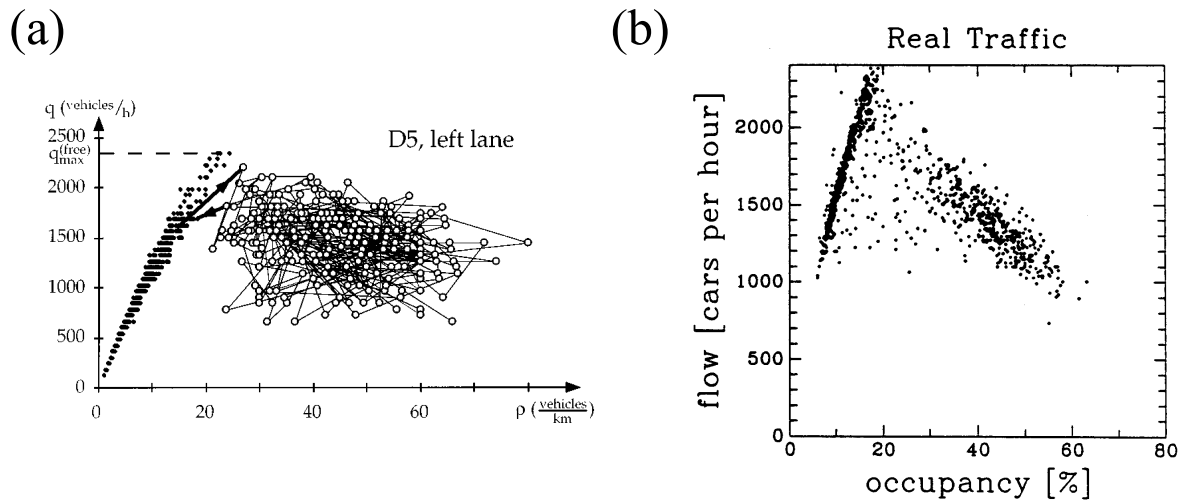


FIGURE 4.18: Valeurs expérimentales de débit de voiture en fonction de la densité, mesurées sur autoroute en deux lieux et à deux moments différents. a) Extrait de [84]. b) Extrait de [85].

chaussée. Des données expérimentales de deux publications différentes ([84] et [85]) sont représentées sur la figure 4.18. Ces deux courbes prises sur des routes différentes à 5 ans d'intervalle relèvent toutes les deux la présence d'un courant maximum. En effet, on n'arrive pas à atteindre une valeur de débit de voiture supérieure à une valeur critique bien que la densité pour ces valeurs de courant soit relativement faible (environ 20%). Cela est exactement la phénoménologie observée pour le trafic de particules dans des canaux fluidiques. Là encore, la non monotonie de la fonction de courant semble être la caractéristique principale du trafic autoroutier à l'origine de la formation de bouchons.

Ce maximum de courant est une des caractéristiques que les acteurs de ce domaine cherchent à modéliser. Une des modélisations des plus simples et des plus efficaces pour interpréter ces observations expérimentales est de voir le trafic routier à travers l'équation de Burgers [86]. Cela permet d'expliquer le seuil de formation des bouchons et la zone d'existence des solutions stationnaires. Des variantes à l'équation de Burgers, tel que le modèle de Nagel *et al* [85] ajuste mieux les données expérimentales. Il s'agit d'un automate cellulaire qui adapte sa vitesse à la densité locale. La vitesse n'est pas constante mais décroît avec la densité; la fonction de courant  $j = \rho \times v$  sera donc non monotone, avec un maximum correspondant à ce courant critique. La revue datant de 2002 de Nagatani *et al* [87] présentent différents modèles qui ont pour principal caractéristique de reproduire cette transition entre courant stationnaire et bouchons.

A présent, soyons un peu plus précis sur le parallèle entre les expériences présentées en début de chapitre et le trafic de voitures. Dans le premier cas, le déplacement de par-

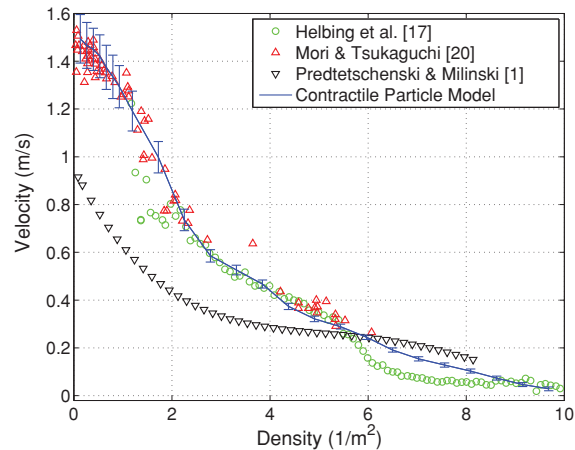


FIGURE 4.19: Données expérimentales (en bleu, rouge, vert et noir) de différentes publications sur la vitesse d'échappée de personnes dans des pièces avec une sortie. La ligne bleue représente un modèle (non commenté). Ces courbes sont extraites de [89].

ticules confinées modifie le champ local de vitesse *via* le fluide. Cette modification induit une diminution de la vitesse avec une augmentation de la densité. Cela aboutit à une relation non monotone de courant et à un courant maximum au-delà duquel des bouchons se forment. Si les interactions sont suffisamment fortes, ces bouchons se forment à des densités faibles. Dans le deuxième cas, les conducteurs interagissent avec les autres *via* une perception visuelle de leur environnement. En effet, plus le trafic est dense, plus les conducteurs vont diminuer leur vitesse. Ainsi sur autoroute la vitesse va diminuer avec la densité. Cela aboutit de la même manière à un courant maximum au-delà duquel il va se former des bouchons. Le paramètre important de cette étude est le courant. En effet, pour une vitesse plus faible, une densité plus forte est acceptable. C'est donc bien le débit qu'il faut réguler si on veut empêcher la formation de bouchons. Cela explique pourquoi des limitations variables, fonction de l'état d'occupation du réseau routier, sont maintenant mises en place dans la plupart des grandes villes.

Cette phénoménologie n'est pas unique à la voiture car le même type de règle régit le trafic de piétons en situation d'évacuation d'urgence par exemple (voir [88] ou [89]). Dans ces articles, les auteurs étudient comment des personnes réparties aléatoirement dans une pièce peuvent s'échapper par une sortie unique. La figure 4.19 représente des données expérimentales. Il s'agit des vitesses des personnes en fonction de la densité locale autour d'elles. Cette fonction est décroissante signifiant qu'il va exister un courant maximum au-delà duquel l'évacuation se déroulera moins bien. Le but pour une évacuation réussie, ou

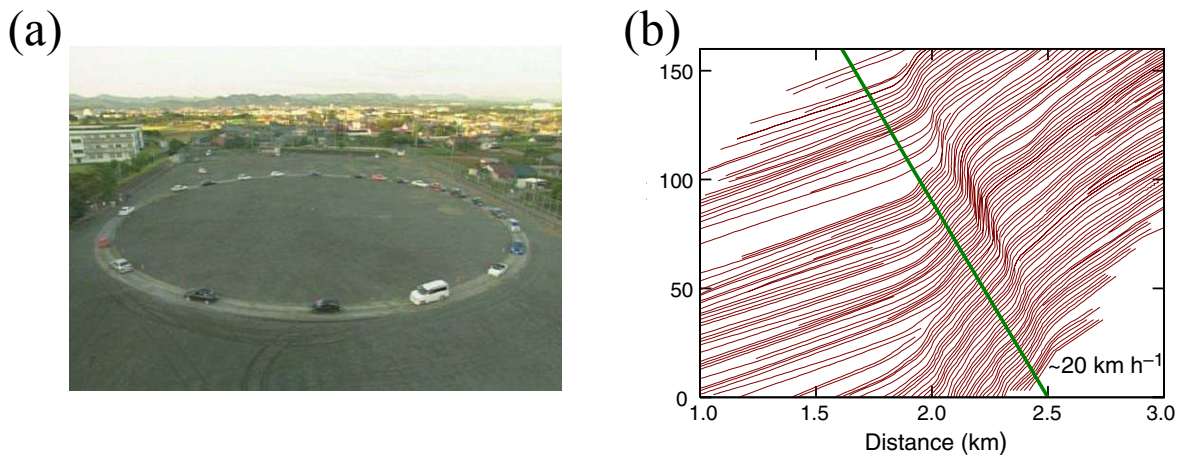


FIGURE 4.20: Exemple d'un bouchon spontané de trafic. Extrait de [90]. a) Anneau sur lequel des voitures sont censées circuler toutes à la même vitesse. Aucune fluctuation n'est ajoutée, à part l'imprécision des conducteurs. b) Diagramme spatio-temporel de l'expérience. Une zone de forte densité (traits resserrés, parallèles à la ligne verte) se déplace dans la direction opposée à celle suivie par les voitures (vitesse négative).

un trafic de piéton en général<sup>1</sup>, est donc de toujours se maintenir en dessous de ce courant critique, dans les situations où la densité de courant critique est inférieure à 1,  $\rho(j^*) < 1$ . Cette notion de courant maximal est vraiment intrinsèque aux phénomènes de transport de particules en interaction.

Pour terminer cette analogie, nous allons nous intéresser à la propagation des bouchons dans le trafic routier. Cela fait l'objet du prochain chapitre et en guise d'introduction, je vais vous présenter un résultat sur des voitures. Il a été vu expérimentalement (voir <http://www.trafficforum.org/stopandgo> pour un exemple particulièrement éloquent) qu'une perturbation locale de la densité en voiture (bouchon spontané) peut avoir des conséquences à très long terme. Un exemple quantitatif provient d'une expérience faite au Japon [90] où des voitures ont circulé sur un anneau sans indication particulière (voir figure 4.20a ou [http://www.youtube.com/watch?v=Suugn-p5C1M&feature=player\\_embedded](http://www.youtube.com/watch?v=Suugn-p5C1M&feature=player_embedded) pour une vidéo). On voit à partir du diagramme spatio-temporel de cette expérience (figure 4.20b) qu'il se forme un bouchon dont la vitesse est négative, et qui met un temps très long à se résorber bien que le trafic de ces voitures s'effectue en moyenne en dessous du courant critique  $j^*$ .

1. Note pour les parisiens fréquentant la gare de RER de Chatelet : de grands piliers semblent être placés aléatoirement entre les différents quais lorsque vous êtes sur la plateforme supérieure. En réalité, cela permet de ne pas guider tout le monde dans la même direction. La densité locale est alors nécessairement plus faible, ce qui permet un meilleur écoulement des passagers transitant par cette plateforme. Ce n'était pas le but originel des architectes mais cela permet un trafic plus fluide.

Toute la question de cette expérience est de comprendre la réponse dynamique de cet ensemble de voitures en mouvement, à une perturbation locale de densité. Nous allons étudier cette problématique sur notre système de gouttes sur réseau dans le chapitre suivant.





## Traffic Jams and Intermittent Flows in Microfluidic Networks

Nicolas Champagne, Romain Vasseur, Adrien Montourcy, and Denis Bartolo

*PMMH, CNRS, ESPCI ParisTech, Université Paris 6, Université Paris 7, 10, rue Vauquelin, 75231 Paris cedex 05, France*  
(Received 19 March 2010; revised manuscript received 21 June 2010; published 21 July 2010)

We investigate both experimentally and theoretically the traffic of particles flowing in microfluidic obstacle networks. We show that the traffic dynamics is a nonlinear process: the particle current does not scale with the particle density even in the dilute limit where no particle collision occurs. We demonstrate that this nonlinear behavior stems from long-range hydrodynamic interactions. Importantly, we also establish that there exists a maximal current above which no stationary particle flow can be sustained. For higher current values, intermittent traffic jams form, thereby inducing the ejection of the particles from the initial path and the subsequent invasion of the network. Eventually, we put our findings in the broader context of the transport processes of driven particles in low dimension.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.044502

PACS numbers: 47.61.Fg, 45.70.Vn, 47.56.+r, 47.61.Jd

Hundreds of industrial processes rely on the transport through obstacles or channel networks to extract, filter, or sort particles and droplet suspensions. Prominent examples include enhanced oil recovery and deep bed filtration [1,2]. At much smaller scale, microfluidic technologies are promising tools to achieve high-throughput manipulation of minute amounts of colloids, droplets, or living cells. Again, numerous solutions are based on the interactions of these objects with obstacles or channel networks [3–5]. Simple and representative examples are the so-called hydrodynamic metamaterials [6]. These devices made of regular micropillars efficiently sort and focus dilute streams of colloids, or cells, according to their size. In all the above examples (macroscopic and microfluidic), the diameter of the advected particles typically compares with the distance between the obstacles, or walls, forming the network. Therefore, even in the dilute limit, the particles locally reduce the network conductivity, thereby inducing a dynamic redistribution of the fluid flow at large scale. This nontrivial interplay between the position of the advected particles and the driving flow field makes the description of the particle traffic a challenging task even in simple geometries [7–10], and is an obvious obstacle to design robust high-throughput microfluidic solutions.

In this Letter, we do not restrain ourselves to a specific application but rather aim at providing a generic description of the trafficking dynamics in large fluidic networks. More precisely, we focus on a wide class of prototypical microfluidic networks where a single particle would follow a unique deterministic trajectory connecting a single inlet to a single outlet; see Fig. 1(a). Increasing the particle injection rate  $j$ , we observed that above a critical value  $j^*$ , a traffic jam builds up at the inlet. This local increase of the density results in the ejection of the particles, which then invade a larger fraction of the network and explore alternative exit paths; Figs. 1(b)–1(d). Surprisingly, this invasion transition occurs at a very low apparent volume fraction for which the particles do not experience any collision. In the high current regime, we also report on

the collective ejection of the particles out of the initial lane which results in an intermittent traffic flow. We combine experimental investigations with a minimal theoretical model to uncover the physical origin of the jamming and of the invasion dynamics of fluidic networks.

Our experiment consists in flowing periodic sequences of droplets through an obstacle network inside a microfluidic channel. The network is made of a  $15 \times 33$  square lattice of cylindrical posts, Fig. 1. The diameter of the posts is  $150 \mu\text{m}$ , the lattice spacing  $\ell$  is  $150 \mu\text{m}$ , and the channel height is  $80 \mu\text{m}$ . Changing the lattice size and the post shape did not yield any qualitatively different results (results not shown). We chose this design so that a single droplet follows a unique deterministic trajectory along the central lane, which is the shortest path connecting the entrance to the exit. We used water droplets (viscosity  $\eta = 1 \text{ mPa s}$ ) as the advected particles rather than solid microbeads to avoid irreversible clogging of the network. The droplets were made and transported in a mixture of hexadecane (viscosity  $\eta = 2 \text{ mPa s}$ ) and span 80 sur-

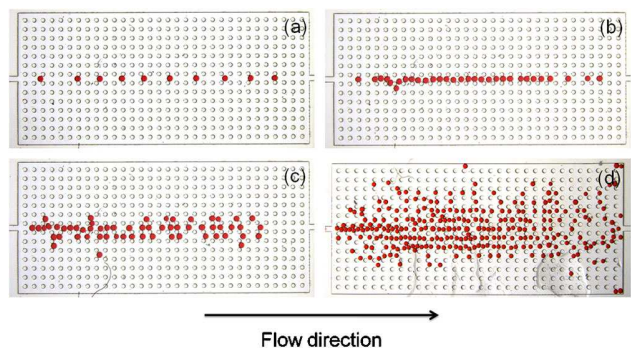


FIG. 1 (color online). Water droplets in hexadecane oil flowing in a square lattice of obstacles. (a) Imposed droplet current  $j = 0.4 \text{ Hz}$ . (b) Droplet current  $j = 0.7 \text{ Hz}$ . A jam forms at the entrance of the network. (c) Droplet current  $j = 2 \text{ Hz}$ . (d) Very high current phase. The droplets invade the whole network. Length of the network is  $9.75 \text{ mm}$ .

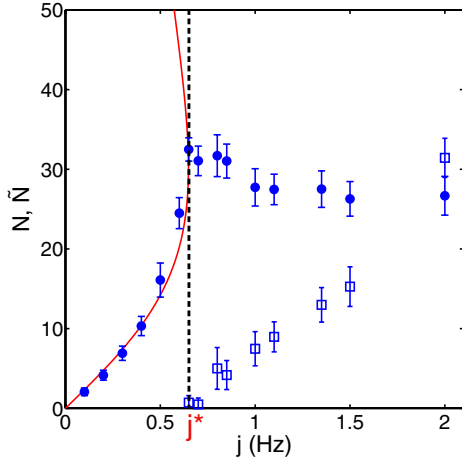


FIG. 2 (color online). Number of droplets in the central lane  $N$  (●) and number of droplets in the other lateral lanes  $\tilde{N}$  (□) plotted versus  $j$  (experiments). Full red line: theoretical prediction for the variations of  $N$  according to Eq. (3) (best fit). The dashed vertical line indicates where the invasion transition occurs:  $j = j^*$ .

factant (3 wt %). To produce the droplets *in situ* we used a homemade drop-on-demand device introduced previously in [11]. This device allowed us to control independently and accurately the droplet size, the flow rate of the continuous phase, and the droplet current  $j$ , i.e., the number of droplets per second injected in the device.  $j$  was varied over 2 decades from 0.05 to 5 Hz. In order to ensure a long-term stability and a fast dynamic response of the droplet emitter, we used a microfluidic sticker made of a photocurable optical adhesive (NOA81, Norland Products) for the main microfluidic channel [12]. In all the experiments, we used droplets with a radius  $a = 89 \pm 4 \mu\text{m}$  and the oil flow rate was set so that the velocity of a single droplet in the center of the channel was  $v_D^0 = 350 \mu\text{m/s}$ . Thus, both the Reynolds number,  $\text{Re} \sim 10^{-3}$ , and the capillary number,  $\text{Ca} \sim 10^{-4}$ , were fixed at a constant small value in all our experiments.

We first show in Fig. 2 how the numbers of droplets in the central lane  $N$  and outside the central lane  $\tilde{N}$  change as the imposed droplet current  $j$  increases. We also plot in Fig. 3 the density field in the central lane  $\rho(x)$  normalized by its maximal close-packing value  $1/(2a)$ , where again  $a$  is the droplet diameter.  $\rho(x)$ ,  $N$ , and  $\tilde{N}$  are time-averaged quantities systematically measured over 25-min experiments, performed 10 min after the injections of the first droplets at a given current  $j$ .

In the very small current limit,  $j \lesssim 0.3$  Hz,  $N(j)$  increases linearly with  $j$ , Fig. 2. The particles keep on following the central lane as an isolated particle would do. The local density  $\rho(x)$  simply reflects the  $x$  component of the velocity field  $v_F^0(x)$  of the continuous phase in a particle free network, Fig. 3. The imposed droplet current and the local density are linearly related:  $j \propto \rho(x)v_F^0(x)$ . The variations of  $\rho$  close to the entrance and the exit are

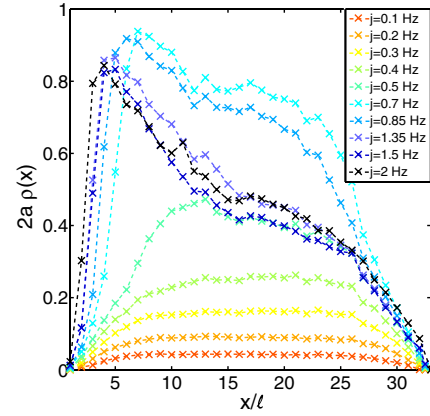


FIG. 3 (color online). Time-averaged density profiles normalized by the close-packing density  $1/(2a)$  in the central lane for different imposed droplet currents  $j$ . The position is normalized by the lattice spacing  $\ell$ .

due to the compression (elongation) of the bare flow field at the entrance (exit) of the network. In all that follows, we ignore this linear hydrodynamic effect and focus only on the bulk properties of the  $\rho$  field. Increasing the current, the traffic flow crosses over to a qualitatively different regime.

For  $0.3 \lesssim j \leq 0.6$  Hz, the droplets still follow the central lane and  $\rho(x)$  retains the same flat profile, Fig. 3. However, the  $N(j)$  curve significantly deviates from its initial linear behavior and its variations diverge as the current approaches a well-defined “critical value”  $j^* = 0.6$  Hz; see Fig. 2. In fact, these nonlinear variations reflect the slowing down of the droplets as their linear density increases. We now stress one of our most important results:  $j^*$  is the maximal stationary particle current that can be sustained in the network. Indeed, as  $j$  reaches  $j^*$ , the uniform and stationary droplet distribution becomes unstable: a jam forms at the entrance of the network and the droplets escape the central lane and invade the network, Figs. 1 and 2. Surprisingly, this instability takes place though the droplet density remains much smaller than the close-packing density,  $\rho(x) < 0.7/(2a)$ , and no droplet collision occurs. We can thus unambiguously infer that long-range hydrodynamic interactions are shaping the nonlinear  $(j, N)$  constitutive relation in Fig. 2 and are responsible for the unexpected destabilization of the traffic flow at  $j^*$ . Before describing the higher current regimes, we now introduce a theoretical model to uncover the origin of these effective hydrodynamic interactions.

Since we investigate rather dilute systems, we use a continuous description that substantially simplifies the algebra. This simplification is done without loss of generality in the far field limit. First, we model the obstacle network by a lattice of identical channels solely characterized by their local hydrodynamic conductivity  $G$ . All the specifics of the obstacle shape are hidden in this parameter which relates the local pressure gradient to the local fluid velocity:  $\mathbf{v}_F(\mathbf{r}) \equiv -G(\mathbf{r})\nabla P(\mathbf{r})$ , where  $\mathbf{r}$  is the position of the

considered elementary channel in the 2D network. Using the incompressibility relation,  $\nabla \cdot \mathbf{v}_F = 0$ , we then obtain the equation for the pressure field:

$$\nabla \cdot [G(\mathbf{r})\nabla P(\mathbf{r})] = 0, \quad (1)$$

with the boundary condition  $\nabla P = -(v_F/G)\hat{\mathbf{x}}$ , where  $v_F$  is the constant fluid velocity far from the particles. For a regular lattice of obstacles,  $G$  is constant. Second, following Jousse and co-workers [8] we describe the advected droplets as constant pointwise perturbations to the local conductance. Indeed, the droplet size is smaller than the lattice spacing  $\ell$ , which defines the cutoff of our continuous theory. More precisely, for  $N$  particles located at  $\mathbf{r}_i(t) = (x_i, 0)$ :

$$G(\mathbf{r}) = G \left[ 1 - b^2 \sum_{i=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t)) \right]. \quad (2)$$

Here the length  $b$  measures how much a droplet locally hinders the fluid flow. Third, the last ingredient of this model is the droplet advection rule. For the sake of simplicity, we assume that a droplet located at  $\mathbf{r}_i(t)$  moves with a velocity  $\dot{\mathbf{r}}_i = \mu \mathbf{v}_F(\mathbf{r}_i)$  where  $\mu$  is a constant mobility coefficient [9]. As the flow is potential, we can now take advantage of an obvious electrostatic analogy. Indeed, for  $N = 1$ , Eqs. (1) and (2) correspond to the equation for the electric potential induced by a pointwise dielectric particle polarized by a homogeneous electric field [13]. Therefore, we readily deduce that, in the far field limit, a single droplet located at  $\mathbf{r}_1(t)$  acts as a source dipole oriented along the  $x$  axis. More quantitatively, we can compute the amplitude of the corresponding flow disturbance  $\mathbf{v}_{\text{dip}}$  by solving Eq. (1) perturbatively. At first order in  $b^2$ , it reduces to  $\nabla \cdot \mathbf{v}_{\text{dip}} = b^2(\mathbf{v}_F \cdot \hat{\mathbf{x}})\partial_x \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1(t))$ . This equation is readily solved using the Gauss theorem in the frame of the moving droplet. Hence, in a 2D network, the  $x$  component of the dipolar perturbation at  $\mathbf{r} = (x, 0)$  is  $v_{\text{dip}}(x; \dot{x}_1) = \dot{x}_1 b^2 (1 - \mu) / (2\pi\mu) \partial_x \frac{1}{|x - x_1|}$  for a single droplet located at  $r_1(t)$ . We focus on the sign of this perturbation, which is opposed to the driving flow along the  $x$  axis. Therefore, it reduces the velocity of two approaching droplets whatever their relative position. We now write down an effective equation for the dynamics of  $N$  aligned particles. To do so we exploit the pairwise additivity of the hydrodynamic interactions within the above dipolar approximation. Hence, the equations of motion take the simple form:  $\partial_t x_i(t) = v_D^0 + \mu \sum_{j \neq i} v_{\text{dip}}(x_j - x_i; \dot{x}_j)$ , where  $v_D^0$  is the velocity of a single advected droplet. These  $N$  equations can be solved analytically when the droplets are equally separated along a single lane by a distance  $L/N$ , where  $L$  is the system size, and all moving at the same speed,  $\dot{x}_i = v_D$ . This corresponds to the only stationary solution we observed in our experiments. Summing over all the dipolar interactions is straightforward and yields a nonlinear relation between the density  $\rho = N/L$  and the uniform particle current  $j =$

$\rho v_D$ . In the large  $N$  limit,

$$j = \frac{\rho v_D^0}{1 + \frac{\pi}{6}(1 - \mu)b^2 \rho^2}. \quad (3)$$

As we measured the velocity  $v_D^0$  independently, we are left with a single fitting parameter. For  $(1 - \mu)b^2 = 0.17 \text{ mm}^{-2}$ , our first order prediction is in excellent agreement with our experimental data; see the gray (red) curve in Fig. 2. Our second central theoretical result is that the  $j(\rho)$  function defined in Eq. (3) has an absolute maximum at  $j = j^* = 0.65 \text{ Hz}$ , implying that there cannot exist any stationary solution for  $j > j^*$ . This result provides a quantitative explanation for the traffic destabilization observed experimentally above this specific current value.

We shall add that the above model is not restricted to 2D square lattices. It is indeed straightforward to extend it to any homogeneous potential Stokes flow, which encompasses flows in bidimensional and tridimensional regular networks of arbitrary symmetry and droplet transport in Hele-Shaw geometries. For instance, our prediction is in agreement and generalizes the hydrodynamic slowing down of droplets in obstacle-free shallow channels reported in [14,15].

In the last part of this Letter, we focus on the traffic dynamics in the high current regime  $j > j^*$ . For current values larger but close to  $j^*$ , typically for  $j^* < j \leq 1 \text{ Hz}$ , a jam forms at the entrance of the microfluidic network: the instantaneous density field  $\rho(x, t)$  becomes asymmetric and its maximum value continuously increases until the droplets locally contact each other, Figs. 1 and 3. Subsequently, droplets are ejected toward the upper and lower lanes and start invading the network, Figs. 1 and 2. Consequently, the local density in the central lane is reduced, but it does not reach a stationary value, as the jam reforms slowly and disrupts again quickly: the traffic flow becomes intermittent. To gain a better insight into this invasion dynamics, we plot in Fig. 4(a) the variations of the instantaneous number of droplets in the central lane  $N(t)$ . We clearly distinguish two time scales in this asymmetric signal: the slow one corresponds to the jam formation, where  $N(t)$  increases, and the faster one corresponds to the time during which droplets are cooperatively ejected from their initial path and  $N(t)$  decreases. In addition, we plot in Fig. 4(b) the probability distribution  $P(\tilde{N})$  of the number of particles traveling outside the central lane for  $j = 0.85 \text{ Hz}$ . This distribution is clearly non-Gaussian, which is another signature of the intermittent dynamics and of the correlated ejection of groups of droplets. Rare events, during which groups of particles travel cooperatively through the lateral lanes, broaden the distribution and increase the mean number of particles ejected out of the central lane above its typical value. The cooperative ejection of the droplets can be qualitatively understood by looking at the symmetry of the dipolar flow field. As sketched in Fig. 4, the droplets moving above and below the central lane increase the transverse flow downstream, thereby inducing the pumping of the droplets from the central to the side

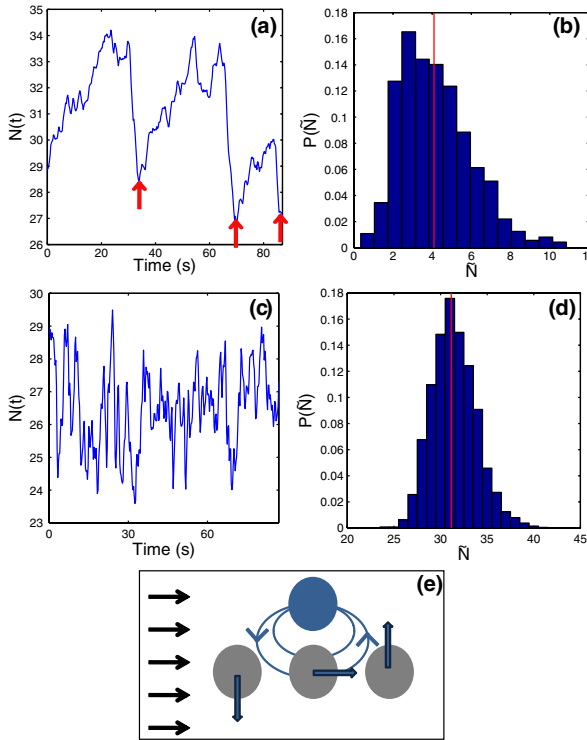


FIG. 4 (color online). (a) Variations of  $N(t)$  in the central lane for  $j = 0.85$  Hz. The red arrow indicates cooperative-ejection events. (b) Histogram of the number of droplets flowing outside the central lane  $P(\tilde{N})$ , computed for 1050 droplets injected in the network at a rate  $j = 0.85$  Hz. Vertical line: mean value (c)  $N(t)$  curve for  $j = 2$  Hz, same time interval as in (a). (d) Histogram  $P(\tilde{N})$ , computed for 3000 droplets injected in the network at a rate  $j = 2$  Hz. (e) Sketch of the effective hydrodynamic interactions between three advected droplets flowing on two adjacent lanes.

lanes; see the picture in Fig. 4(c). In turn, this pumping mechanism is amplified as the number of droplets on side lanes increases, which results in an unstable dynamics yielding the correlated ejection of several droplets when the local density reaches a sufficiently high value.

Finally we briefly describe the high current regime,  $j > 1$  Hz. For imposed currents much larger than  $j^*$ , the traffic flow remains nonstationary. However, the jam forms and disrupts continuously without any clear separation between the time scale of these two processes; see Fig. 4(c). Consequently, the distribution of  $\tilde{N}$  becomes more symmetric, and seems to converge toward a Gaussian behavior in the large  $j$  limit, Fig. 4(d). In addition, we found that above  $j^*$ , the system self-organizes so that the density field along the initially preferred path converges and becomes independent of the injected current value. To go beyond this first attempt at understanding the traffic dynamics above  $j^*$ , a more thorough statistical analysis would be required. Work along this line is in progress.

In summary, we have demonstrated that when particles are advected in a fluidic network, they locally reduce the

network conductance thereby inducing nonlocal dipolar interactions between the moving objects. The main consequence of this hydrodynamic coupling is the limitation of the maximal stationary current  $j^*$  that can be sustained in the network. Above  $j^*$ , the initially preferred path becomes unstable and the particles intermittently invade the whole network. To close this Letter, we note that the destabilization and the jamming of stationary traffic flows go beyond the present study. The existence of a maximal current is indeed a very generic feature reported for numerous classes of theoretical models of driven interacting-particle systems, including discrete exclusion processes [16] and phenomenological continuous models of self-driven particles (pedestrian or vehicles) [17]. All these models possess a common feature: a nonmonotonic constitutive relation relating the current to the particle density. To our knowledge, we provide the first experimental evidence of such a maximal current.

We thank Julien Tailleur for insightful comments and suggestions. Raphael Voituriez is also acknowledged for an illuminating discussion. This work was partly supported by Paris-Emergence Program.

- [1] J.-P. Hulin, A.-M. Cazabat, E. Guyon, and F. Carmona, *Hydrodynamics of Dispersed Media* (Elsevier, New York, 1990).
- [2] C. Tien, *Granular Filtration of Aerosols and Hydrosols* (Butterworths, Boston, 1989).
- [3] G. M. Whitesides, *Nature (London)* **442**, 368 (2006).
- [4] S.-Y. Teh, R. Lin, L.-H. Hung, and A. P. Lee, *Lab Chip* **8**, 198 (2008).
- [5] L. R. Huang, E. C. Cox, R. H. Austin, and J. C. Sturm, *Science* **304**, 987 (2004).
- [6] K. J. Morton, K. Lotharback, D. W. Inglis, O. K. Tsui, J. C. Sturm, S. Y. Chou, and R. H. Austin, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **105**, 7434 (2008).
- [7] W. Engl, M. Roche, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 208304 (2005).
- [8] F. Jousse, R. Farr, D. R. Link, M. J. Fuerstman, and P. Garstecki, *Phys. Rev. E* **74**, 036311 (2006).
- [9] M. Schindler and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 044501 (2008).
- [10] M. J. Fuerstman, P. Garstecki, and G. M. Whitesides, *Science* **315**, 828 (2007).
- [11] J.-C. Galas, D. Bartolo, and V. Studer, *New J. Phys.* **11**, 075027 (2009).
- [12] P. Nghe D. Bartolo, G. Degré, and V. Studer, *Lab Chip* **8**, 274 (2008).
- [13] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (John Wiley and Sons, New York, 1998).
- [14] T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv, *Nature Phys.* **2**, 743 (2006).
- [15] T. Beatus, R. Bar-Ziv, and T. Tlusty, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 124502 (2007).
- [16] B. Derrida and M. R. Evans, *Non-Equilibrium Statistical Mechanics in One Dimension* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1997).
- [17] D. Helbing, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 1067 (2001).

## Dynamique non-linéaire d'un cristal hydrodynamique 1D

Nous avons démontré l'existence de solutions stationnaires pour le transport de particules 1D en interaction hydrodynamique lorsque le courant en particules est inférieur à une valeur critique,  $j^*$ . Il est alors naturel de s'intéresser à la stabilité de ces solutions stationnaires. Beatus *et al* ont montré en 2006 qu'un cristal 1D de gouttes en interaction est marginalement stable [23]. Mais leurs expériences n'ont pas pour objet l'étude de cette stabilité. Nous avons donc voulu étudier leur stabilité pour des perturbations longitudinales à l'écoulement.

A travers une expérience microfluidique et aussi un calcul par expansion du gradient, nous allons répondre à cette question et au-delà. Une partie de ces résultats a été publiée dans un article [91] reproduit à la fin du chapitre.

### 5.1 Setup et enjeux

Comme présenté au début de ce manuscrit, de nombreuses applications microfluidiques se basent sur l'utilisation de gouttes, allant des applications biologiques ([92] pour un bon exemple) aux micro-réacteurs chimiques [93]. Bien que l'objectif de tous ces travaux soit une exploitation de ces techniques à haut-débit, peu d'étude fondamentales ont été réalisées sur la stabilité de l'élément de base : le train 1D de gouttes. Notre travail ([74], [91]) ainsi que celui de l'équipe de Bar-Ziv ([24], [23]), semblent pionniers de ce point de vue. Cette équipe avait montré la présence de modes de vibrations longitudinaux équivalent à des phonons dans un train de gouttes sous écoulement. Nous avons pour ambition d'étudier la réponse dynamique d'un cristal 1D régulier formé de gouttes à une perturbation

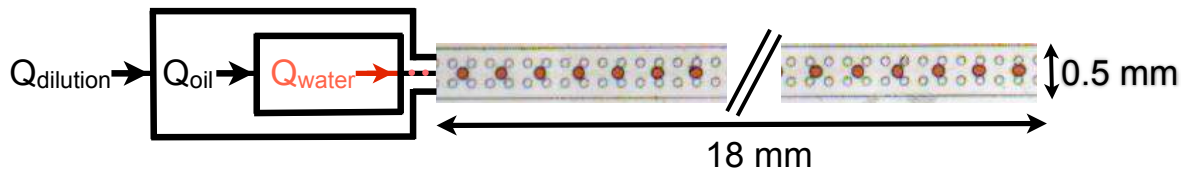


FIGURE 5.1: Système microfluidique de l'expérience. Un module de dilution indépendant de la formation des gouttes (*via* le flow-focusing) permet un ajustement rapide et précis de la densité linéique. Les gouttes colorées sont advectées dans de l'hexadécane + Span 80 (3 % en masse)

longitudinale d'amplitude finie.

Le dispositif utilisé a été décrit dans le chapitre 3 et un schéma est reproduit sur la figure 5.1. Il s'agit en réalité d'un système fabriqué en NOA 81 (stickers, cf chapitre 3 ou [57]), ce qui permet une réponse rapide du circuit. Le circuit microfluidique est un réseau de  $3 \times 90$  obstacles circulaires de diamètre  $100 \mu\text{m}$  et de pas  $200 \mu\text{m}$ . Il en résulte un réseau de longueur  $L = 18\text{mm}$ , de largeur  $W = 500\mu\text{m}$  et de hauteur  $h = 70\mu\text{m}$ . Les gouttes d'eau, colorées avec le colorant alimentaire rouge E125, sont fabriquées à une jonction de type flow-focusing (voir Annexe B du chapitre 3). La phase continue est constituée d'un mélange d'hexadécane et de Span 80 (3% en masse) pour éviter la coalescence des particules. Une entrée additionnelle en hexadécane ( $Q_{\text{dilution}}$  sur la figure 5.1), que l'on peut contrôler indépendamment, est ajoutée pour pouvoir plus facilement contrôler la fraction volumique en goutte. L'objectif de l'expérience est de créer, dans un premier temps, un cristal 1D stationnaire de gouttes à une fraction volumique uniforme donnée  $\rho(x, t) = \rho_0$ , puis de créer ensuite localement un bouchon. On étudie alors la dynamique induite par cette perturbation; cette expérience est répétée pour différentes fractions volumiques initiales.

Afin de comparer quantitativement nos résultats pour différentes fractions volumiques, il est nécessaire que la taille des gouttes soit constante sur l'ensemble des expériences. Les deux débits en phase continue sont très finement réglés, grâce au régulateur électronique de pression, pour s'assurer des fractions volumiques différentes pour des tailles de particules constantes. Cette étape cruciale rend le procédé complexe à mettre en oeuvre. Il est ensuite nécessaire de mesurer correctement le débit en phase continue pour pouvoir renormaliser toutes nos expériences. On a réussi à obtenir des gouttes de diamètre  $D=140\mu\text{m}$  avec une variance de l'ordre de 2 % sur l'ensemble des expériences. La vitesse des gouttes varie quant à elle de  $5 \text{ mm.s}^{-1}$  à  $15 \text{ mm.s}^{-1}$ . Cela correspond à un nombre capillaire de l'ordre de  $10^{-3}$ ; et à un nombre de Reynolds en dessous de  $10^{-1}$  signifiant que les effets inertiels sont négligeables.

La création locale d'un bouchon suit un protocole précis. Une fois que le système est chargé à une certaine fraction volumique stationnaire, on coupe le débit additionnel en

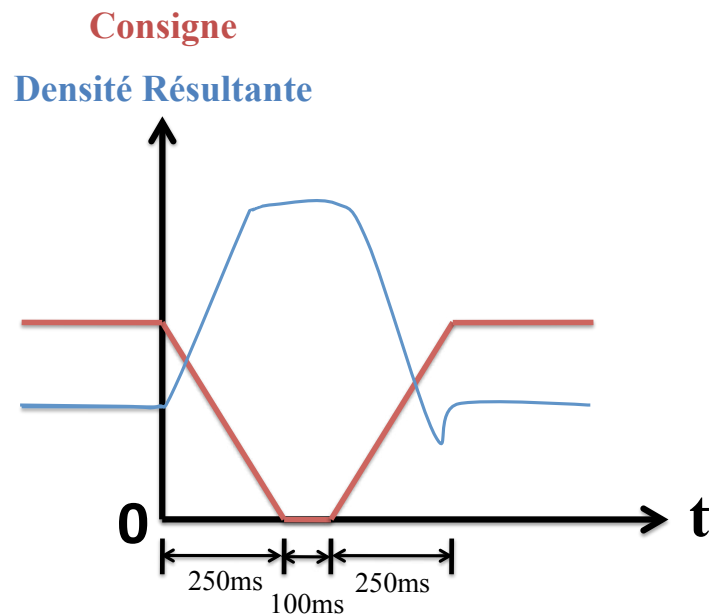


FIGURE 5.2: Protocole pour réaliser des bouchons locaux et la réponse du système. Rouge : consigne appliqué aux bornes du contrôleurs de pression du dilueur. rampe de 250ms. Arrêt durant 100ms. Puis une rampe de 250ms pour atteindre la valeur initiale. Bleu : Résultat au niveau de la densité linéique. Il apparait un défauts de densité après la deuxième.

hexadécane. Plus précisément, on fait décroître linéairement sa valeur en 250 ms, on stoppe ce débit 100 ms, puis on le réajuste à sa valeur initiale de manière linéaire en 250 ms ; comme représenté en rouge sur la figure 5.2. Cela crée un bouchon ; la fraction volumique le long du canal central résultante étant schématiquement représentée en bleu sur la figure 5.2. On peut noter la présence de petits défauts au niveau de cette fraction volumique, lorsqu'on stabilise la valeur de consigne. Cela est une caractéristique de nos régulateurs de pression difficilement supprimable.

Ainsi, nous avons réussi à fabriquer un système performant pour l'étude de la dynamique de perturbation pour un cristal 1D en interaction. La présence des obstacles nous permet de nous focaliser sur la réponse longitudinale du système en empêchant les fortes perturbations transversales et un envahissement immédiat du réseau. J'insiste sur le fait que cette technique à dilueur est particulièrement adaptée dans ce cas-là car la réponse des débits est quasi immédiate grâce à l'utilisation conjointe du régulateur électronique de pression et des Stickers.

On va maintenant s'intéresser aux réponses que cette expérience nous a apportées..

## 5.2 Résultats expérimentaux

Il convient tout d'abord de clairement définir la mesure de la fraction volumique,  $\rho$ , qui est la densité linéique en particule et qui va être une quantité centrale de ce problème. Il s'agit du nombre moyen de particules sur un rectangle de taille  $200 \times 75 \mu\text{m}^2$ , correspondant à une maille du réseau en longueur, et est normalisée par la valeur d'empilement compact telle qu'une valeur de 1 corresponde à des particules en contact.

On s'intéressera dans ce chapitre plus à la vitesse des particules qu'au courant en particules pour décrire notre système. Pour relier notre travail au chapitre précédent, nous avons mesuré la vitesse des particules dans l'état stationnaire en fonction de la densité. Toutes ces vitesses sont normalisées par la vitesse de la phase continue pour pouvoir être comparées :

$$v_{\text{norm}} = \frac{v_{\text{goutte}}}{v_{\text{goutte}}^{\infty}} \times \frac{v_{\text{huile}}}{v_{\text{huile}}^{\infty}} \quad (5.1)$$

où  $v_{\text{goutte}}^{\infty}$  et  $v_{\text{huile}}^{\infty}$  représentent respectivement la vitesse d'une goutte isolée (sans gouttes à proximité) et la vitesse du fluide sans particule. On suppose implicitement ici que la vitesse des gouttes est reliée à la vitesse du fluide *via* un coefficient de mobilité,  $v_{\text{goutte}} = \mu v_{\text{fluide}}$ . On a vu que le nombre capillaire est faible dans ces expériences. On peut donc raisonnablement supposer que ce coefficient va rester à une valeur constante pour toutes les expériences car cela signifie que les gouttes sont peu déformées par l'écoulement visqueux. Sa valeur expérimentale est proche de 0.7.

Regardons tout d'abord comment varie la vitesse des particules en fonction de la densité alors qu'aucune perturbation n'a encore été appliquée au cristal 1D de gouttes. Cela est représenté sur la figure 5.3. On voit, comme attendu, un ralentissement hydrodynamique dû aux interactions entre particules. Nos valeurs expérimentales sont approximées par la courbe théorique obtenue à partir de l'équation 4.22 (en bleu) issue du calcul du chapitre précédent. Je rappelle ici que cette relation constitutive est une solution perturbative de notre modélisation au premier ordre en  $b^2$ . Cette courbe approche raisonnablement nos mesures mais, **à la précision de nos expériences**, elle est indistinguishable avec une décroissance linéaire entre la vitesse des particules et la densité (en rouge sur la figure 5.3).

Nous allons maintenant étudier plus en détail la dynamique induite par la perturbation. Pour cela, je vais décrire une expérience à une densité initiale particulière,  $\rho_0 = 0,4$ . Aucun changement qualitatif dans le comportement n'est à observer pour les autres densités. Pour illustrer la réponse dynamique induite par une perturbation de densité sur un cristal 1D, la figure 5.5 représente le profil de densité à trois temps différents tandis que la figure 5.4 représente la totalité du diagramme spatiotemporel de l'expérience.

Tout d'abord, cette perturbation est advectée le long du canal mais on observe que sa forme n'est pas conservée. On voit un raidissement du front au niveau des perturbations de la densité ; que cela soit pour l'excès de densité ou le défaut de densité en aval (mis en avant



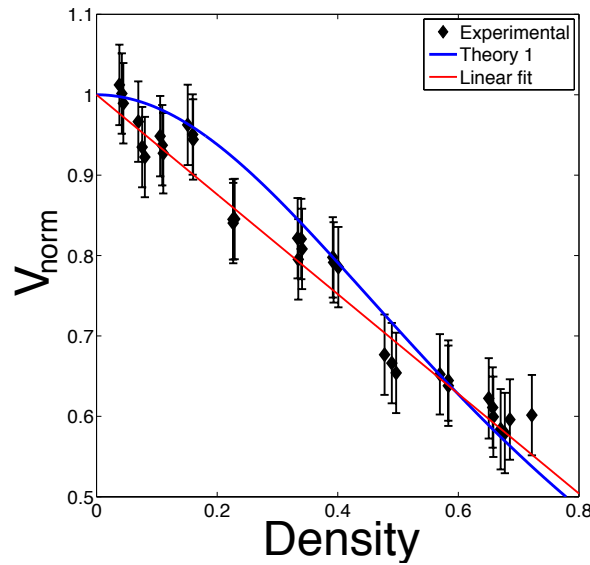


FIGURE 5.3: Vitesse des gouttes en fonction de la densité. Ces valeurs sont extraites à partir de l'état stationnaire  $\rho_0$  de l'expérience. Ligne Bleu : approximation à partir de l'équation 4.22,  $v_{\text{norm}} = \frac{1}{1+(\rho/\rho_1^*)^2}$  Ligne rouge : approximation linéaire  $v_{\text{norm}} = (1 - \rho/\rho^*)$ .

au travers de flèches sur la figure 5.5). Le front de densité correspondant à l'excès local de densité est advecté à une vitesse plus faible que le reste des gouttes, tandis que le défaut semble être advecté à une vitesse supérieure. La vitesse des gouttes peut se lire sur le diagramme spatio-temporel 5.4 ; ce sont les lignes diagonales loin du défaut, mises en relief par une flèche noire. Cette réponse dynamique, que cela soit pour les perturbations positives ou négatives de densité, n'est pas compatible avec une réponse linéaire à la perturbation initiale et ne peut donc pas simplement être décrite par une superposition d'ondes dispersives (phonons) comme décrit dans l'article de Beatus *et al* [23]. La brisure de symétrie observée entre la gauche et la droite révèle que l'évolution de cette perturbation est un **phénomène non linéaire**.

Ce processus a toutes les caractéristiques d'une onde de choc, [94]. En effet, il s'agit de la propagation d'une perturbation et nous considérons une onde de densité. En effet, les particules allant plus vite que la perturbation, cette perturbation n'est pas constituée des mêmes particules au cours du temps. Pour clarifier ce point, le montage de trois clichés dans le figure 5.6 suit le parcours d'une goutte lors d'une expérience. On voit que la goutte mise en relief par une flèche bleue va plus vite que le sommet de l'onde de densité représenté par une flèche noire. On peut alors clairement définir la propagation de ce choc comme une onde de densité.

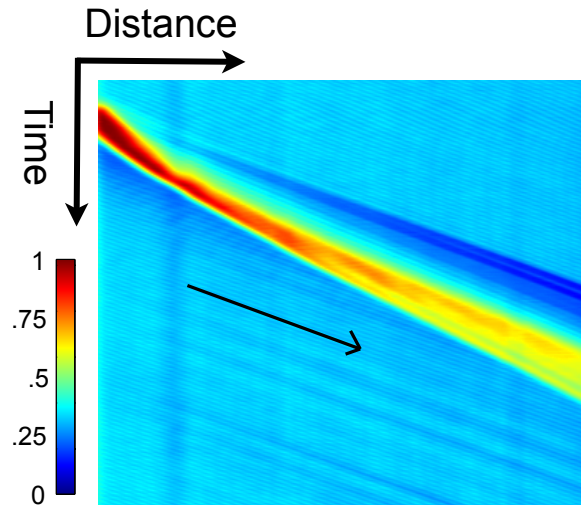


FIGURE 5.4: Evolution Spatiotemporelle du champ de densité,  $\rho(x, t)$ , après la formation d'un bouchon, pour une densité initiale,  $\rho_0 = 0.4$ . L'échelle de couleur indique la fraction volumique locale. Une flèche noire indique le chemin d'une particule loin de la perturbation.

On peut ensuite définir une vitesse pour cette onde de choc. On voit effectivement que cette perturbation se déplace à une vitesse constante (ligne droite dans le diagramme spatio-temporel 5.4). On reporte ensuite les vitesses de ces ondes en fonction de la densité  $\rho_{\text{choc}}$  pour toutes les expériences. Cette densité est définie comme étant égale à la valeur moyenne de la densité entre le bord amont et le sommet du choc (zone colorée en bleu sur la figure 5.5). Ces résultats sont représentés avec des ronds bleus sur la courbe 5.7. Il existe donc une relation linéaire entre la vitesse de ces ondes et la densité ainsi définie.

$$v_{\text{choc}} = v_{\text{goutte}}^{\infty} \left( 1 - \frac{\rho_{\text{choc}}}{\rho^*} \right) \quad (5.2)$$

avec  $v_{\text{goutte}}^{\infty}$  correspond à la vitesse d'une goutte isolée et  $\rho^* \sim 0.8$ . Cette expression nous montre que la vitesse de cette onde peut s'annuler pour une valeur finie de densité. Cela signifie qu'il peut théoriquement subsister dans un cristal 1D de particules **des perturbations de temps de vie infini**. Cela n'a pas pu être vu expérimentalement car les fluctuations proches de  $\rho^*$  entraînent un envahissement du réseau. La dynamique n'est plus alors plus 1D. Mais nous avons quand même réussi à observer expérimentalement un ralentissement de la vitesse par un facteur 5.

On cherche maintenant un cadre théorique pour quantitativement interpréter ces résultats expérimentaux.

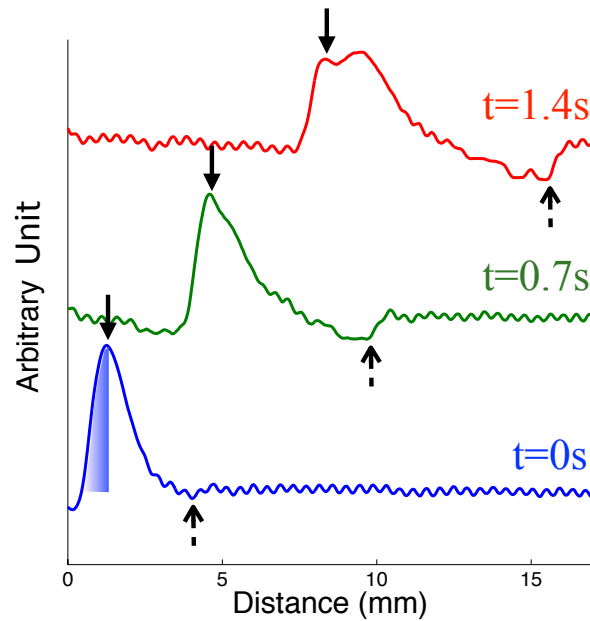


FIGURE 5.5: Densité le long du canal à 3 instants différents pour une même expérience correspondant à  $\rho_0 = 0.4$ . Bleu :  $t=0s$ . La zone coloriée en bleu est la partie de la courbe sur laquelle est mesurée la fraction volumique correspondant au choc,  $\rho_{\text{choc}}$ . Vert :  $t=0.7s$ . Rouge :  $t=1.4s$ . La flèche en trait plein est là pour repérer le sommet du choc tandis que la flèche pointillée repère le développement du déficit en densité.

### 5.3 Modélisation continue

On propose ici de faire un calcul dont l'objectif est similaire à celui du chapitre précédent, ie, comprendre la dynamique 1D d'un cristal de particules. Nous allons baser ce calcul sur le fait que nous savons d'après Beatus *et al* qu'un cristal 1D de gouttes est marginalement stable. Cela nous permet de pouvoir s'intéresser uniquement aux grandes longueurs ondes de perturbations dans le cristal tout en restant assez général. On va faire un calcul par expansion du gradient, ce qui est techniquement différent que le calcul effectué précédemment. Les deux font appel à des hypothèses similaires et vont aboutir à des résultats similaires.

#### 5.3.1 Calcul par expansion du gradient

Nous avons montré dans le chapitre précédent, que l'on peut définir le courant comme :

$$j_{\text{goutte}}(x, t) = \mu v_{\text{goutte}}(x, t) \times \rho(x, t) \quad (5.3)$$

Avec  $\mu$  un coefficient de mobilité constant. Combiné à l'équation de conservation de la masse, nous obtenons :

$$\partial_t \rho(x, t) + \partial_x [\mu v_{\text{goutte}}(x, t) \rho(x, t)] = 0 \quad (5.4)$$

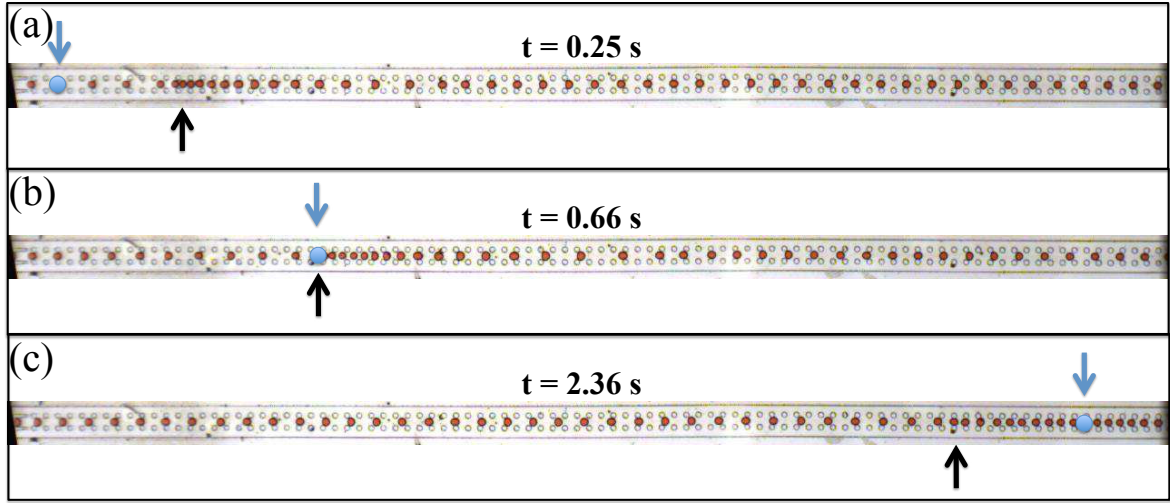


FIGURE 5.6: Images d'une même expérience, correspondant  $\rho_0 = 0.4$  à trois temps différents. La flèche et le point bleu indiquent la position de la même goutte le long de l'expérience. La flèche noir indique le sommet du choc. a)  $t=0.25s$ . La goutte repéré est en amont du choc. b)  $t=0.66s$ . La goutte et le sommet du choc sont confondus. c)  $t=2.36s$ . La goutte est en aval du choc. Ainsi on voit qu'il s'agit d'une onde de choc et non pas d'une simple advection d'excès de densité.

Ces deux équations sont valides sans perte de généralité. Nous allons maintenant supposer deux hypothèses simplificatrices.

La première suppose que notre écoulement peut être correctement décrit *via* un écoulement potentiel, comme dans le chapitre précédent. La deuxième consiste à considérer notre suspension de gouttes diluée, amenant à résoudre le problème hydrodynamique dans la limite de champ lointain. Dans cette limite, on peut supposer qu'une particule située en  $x = 0$  induit une perturbation dipolaire au champ de vitesse de la forme :

$$v_{\text{dip}}(x, t) = -\frac{p}{x^2} \quad (5.5)$$

Où  $p$  représente la force du dipôle. Elle est proportionnelle à la différence de vitesse entre le fluide et la particule (voir chapitre 1 et 4) et au diamètre,  $D$ , des particules ; soit :

$$p \sim v_{\text{goutte}}^{\infty} \times (1 - \mu) D^2 \quad (5.6)$$

On a de cette manière considéré la forme de la perturbation induite par la présence d'une particule. Cette forme particulière est valide exactement lorsque le réseau ne comporte pas d'obstacles.

On considère un cristal 1D de particules et on regarde la perturbation à une particule située en  $x = 0$  induite par l'ensemble des autres particules. Toujours dans notre limite de

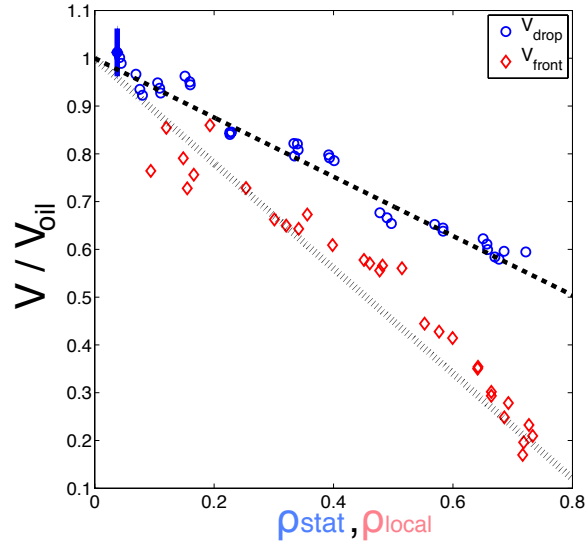


FIGURE 5.7: Vitesses des gouttes et des ondes de chocs. Ces vitesses sont normalisées par la vitesse de la phase continue et d'une goutte isolée (voir texte). Ronds bleus : vitesse des gouttes en fonction de la densité stationnaire. Losanges rouges : vitesse des chocs de densité en fonction de la quantité  $\rho_{\text{choc}}$  définie dans le texte.

suspension diluée, nous considérons les perturbations additives de paires.

$$v_{\text{goutte}}(x, t) = v_{\text{goutte}}^{\infty} + \frac{1}{D} \int_{-\infty}^{\infty} \rho(x - x', t) v_{\text{dip}}(x') dx' \quad (5.7)$$

Notre but est de transformer l'expression précédente en une expansion locale du gradient du type :

$$v_{\text{goutte}}(x, t) = v_{\text{goutte}}^{\infty} + \delta v = v_{\text{goutte}}^{\infty} + \sum_i a_i \phi(x, t) \partial_x^i \phi(x, t) \quad (5.8)$$

Il est nécessaire pour y parvenir de régulariser l'expression 5.7 en  $x = x'$ . N'importe quelle régularisation conduit à des résultats similaires. Cela va seulement modifier la définition arbitraire de la densité  $\rho$ , que nous ne pourrions définir que sur des distances supérieures à cette longueur de régularisation. Il n'y a pas de perte de généralité par cette régularisation. On choisit cette longueur égale au rayon,  $R$ , des particules.

$$\delta v(x, t) = \frac{1}{D} \left( \int_{-\infty}^{-R} \rho(x - x', t) v_{\text{dip}}(x') dx' + \int_R^{\infty} \rho(x - x', t) v_{\text{dip}}(x') dx' \right) \quad (5.9)$$

On sait d'après Beatus [24], que les interactions sont écrantées exponentiellement sur des distances supérieures à la largeur  $W$  du canal. On peut alors simplement considérer les interactions pour des distances inférieures à  $W$ . Cela conduit à

$$\delta v(x, t) = \frac{1}{D} \left( \int_{-W}^{-R} \rho(x - x', t) v_{\text{dip}}(x') dx' + \int_R^W \rho(x - x', t) v_{\text{dip}}(x') dx' \right) \quad (5.10)$$

On intègre par partie notre expression et on effectue le changement de variable  $s=x'/a$  pour obtenir :

$$\delta v(x, t) = -\frac{p}{RD} \int_1^{W/R} \frac{\rho(x + as, t) + \rho(x - as, t)}{s^2} ds \quad (5.11)$$

Nous effectuons une transformée de Fourier [95], de l'expression précédente selon les variables  $x$  et  $t$  (variable conjuguée  $q$  et  $\omega$ ).

$$\delta \tilde{v}_{q,\omega} = -\frac{2pR}{D} \tilde{\rho}_{q,\omega} \int_1^{W/R} \frac{\cos(qas)}{(as)^2} ds \quad (5.12)$$

Nous allons maintenant nous placer dans la limite des petits  $q$ , c'est-à-dire des grandes longueurs d'ondes.

$$\delta \tilde{v}_{q,\omega} = -\frac{2pR}{D} \tilde{\rho}_{q,\omega} + O[(qW)^2] \quad (5.13)$$

Ou dans l'espace réel :

$$\delta v(x, t) = -\frac{2pR}{D} \rho(x, t) + O[(W/x)^2] \quad (5.14)$$

Ce qui aboutit, un fois réinjectée dans l'équation 5.4 à une **équation de Burgers** [94] :

$$\partial_t \rho(x, t) + \mu v_{\text{goutte}}^{\infty} \left(1 - \frac{\rho(x, t)}{\rho^*}\right) \partial_x \rho(x, t) = 0 \quad (5.15)$$

Avec :

$$\rho^* = \frac{v_{\text{goutte}}^{\infty} RD}{2p} = \frac{1}{4(1-\mu)} \quad (5.16)$$

Cela indique la présence théorique de choc dans ce système. Ces chocs ont une vitesse définie :

$$v_{\text{choc}} = v_{\text{goutte}}^{\infty} \left(1 - \frac{\rho_{\text{choc}}}{\rho^*}\right) \quad (5.17)$$

Ce calcul permet aussi de décrire explicitement la vitesse des gouttes dans leur état stationnaire, soit  $v_{\text{goutte}} = v_{\text{goutte}}^{\infty} \left(1 - \frac{\rho}{2\rho^*}\right)$ .

On peut tout d'abord commenter ces expressions au regard de nos expériences sur ce cristal 1D. Le fait que la dynamique soit guidée par une équation de Burgers explique la forme de l'évolution d'une perturbation. Le raidissement en amont d'une perturbation et son élargissement en aval est correctement décrit par cette équation. Plus quantitativement, ce calcul prédit une décroissance linéaire entre la vitesse des chocs ou des gouttes et la densité en particule. Cela est vérifié expérimentalement. On obtient après calcul  $\partial_{\rho_{\text{choc}}} v_{\text{choc}} / \partial_{\rho} v_{\text{goutte}} = 2$ ; et on trouve **1,8** expérimentalement, ce qui est un très bon accord. La concordance entre théorie et expérience nous permet d'affirmer que la réponse à une perturbation d'un cristal 1D de particule est correctement décrite par une équation dynamique de Burgers (voir [94] pour plus de détails).

Avant de commenter les implications de ce calcul, je tiens à comparer clairement ce calcul

continu et notre approche perturbative du chapitre précédent pour vous montrer que cela est similaire.

### 5.3.2 Comparaison modèle continu et modèle discret

Dans les deux cas, nous avons supposé que l'écoulement était potentiel. Dans le calcul du modèle continu aboutissant à une équation de Burgers 1D, nous avons supposé que nous sommes dans la limite diluée, cela implique que les interactions sont dans cette limite additives de paire. Cela est similaire à notre hypothèse de premier ordre dans le calcul perturbatif, où par conséquent les perturbations sont elles aussi additives. Ce sont les deux seules hypothèses et elles conduisent dans les deux cas à une perturbation dipolaire au champ de vitesse,  $v = v_0 + v_{\text{dip}}$ .

Il existe par contre, à première vue, une différence sur l'écriture de ces vitesses dipolaires. Cette différence provient en réalité uniquement de la manière dont nous avons défini la densité dans ce chapitre. En effet, si nous imposons comme régularisation à l'équation 5.8, un longueur petite ( $\epsilon$ ) devant la taille des particules, nous pouvons alors définir la densité sur sur cette taille  $\epsilon$ ,  $\rho = \sum_{\text{particules}} \delta(x - x_{\text{particule}})$ , avec la fonction Dirac  $\delta$  non nulle sur une distance  $\epsilon$ . Dans ce cas là, la densité  $\rho$  d'un cristal 1D de particules n'est pas égal à une valeur constante mais est discrétisée sur des tailles  $\epsilon$ . L'équation 5.7 s'écrit dans ce cas :

$$\delta v(x, t) = \frac{1}{D} \int_1^{W/\epsilon} \delta(x - x') v_{\text{dip}}(x') dx' = \sum_{\text{particules}} v_{\text{dip}}(x - x_{\text{particule}}) \quad (5.18)$$

Cette équation est exactement similaire à celle du chapitre 4. Ainsi, les hypothèses pour les deux calculs sont équivalentes et elles aboutissent bien au même résultat.

De plus, les deux expressions conduisent bien à la formation d'ondes de choc. Notre expression de la vitesse obtenue dans le chapitre précédent,  $v_{\text{goutte}} = \frac{v_{\text{goutte}}^{\infty}}{1+b^2(1-\mu)\rho^2}$ , permet aussi d'expliquer l'évolution de la forme de la perturbation. En effet, le point important est la décroissance de la vitesse avec la densité. Cela implique que le lieu où la densité est plus grande va être plus rapide que le lieu où la densité est plus faible. Cela conduit à la présence d'un choc avec un raidissement en avant et un élargissement en arrière (ou l'inverse, cela dépend du signe de la perturbation). Pour vous en convaincre, j'ai simulé l'équation de Burgers ainsi que l'équation 4.22 avec des paramètres similaires. Cette simulation a été faite selon le schéma de Lax-Wendroff [96]. Un terme de diffusion est ajouté aux équations pour rendre le modèle soluble numériquement. J'ai simulé l'équation  $\partial_t \rho = \partial_x j + D \partial_{xx} \rho$ , avec l'expression de  $j$  dépendant du modèle. Les paramètres de la simulation sont les suivants :

- choix empirique d'une maille de  $N = 1000$ , soit  $dx = 1/N$ ,  $dt = 0.0002$  et  $D=1/12$ .
- simulation du modèle 1 par,  $j = \frac{1}{1+3*\rho^2}$  ; et du modèle 2 (Burgers) par,  $j = \rho(1 - \rho)$ .  
Dans les 2 modèles  $\rho(j^*) = 0.5$ .

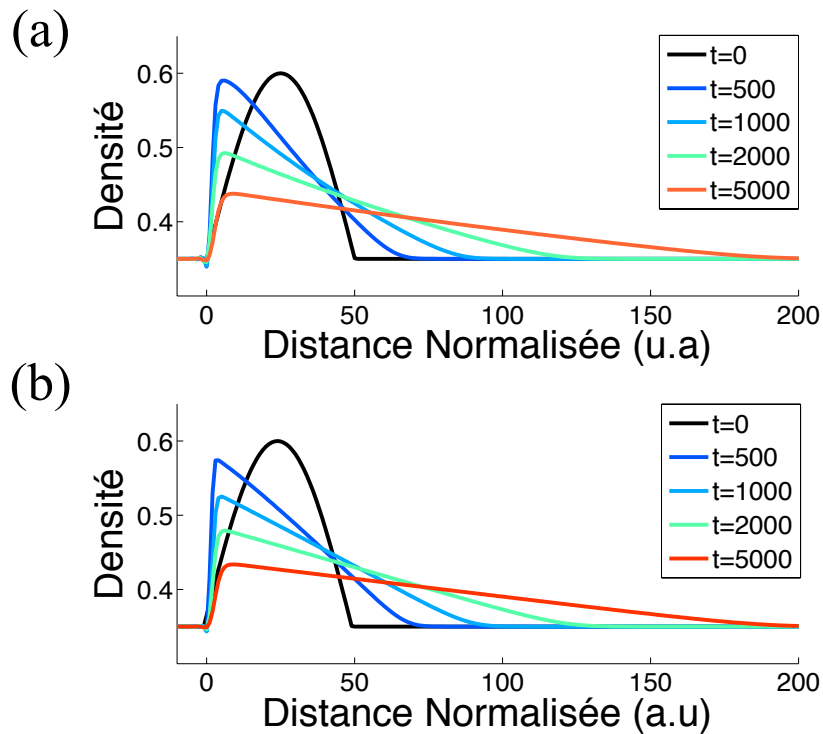


FIGURE 5.8: Simulation numérique de l'équation dynamique pour une perturbation sinusoïdale à un champ de densité. Les couleurs représentent des temps différents, voir encart de légende. a) Le courant est écrit à partir du résultat du calcul perturbatif,  $j = \frac{1}{1+3*\rho^2}$ . b) Le courant est écrit selon Burgers,  $j = \rho(1 - \rho)$ .

On voit sur la figure 5.8 comment la perturbation, une sinusoïde sur une demi-période (représentée en noir), évolue selon les 2 scénarios. La différence entre ces deux simulations est donc bien quasi nulle.

Nous avons mis en avant expérimentalement et théoriquement que la réponse à des perturbations d'amplitude finie dans un cristal 1D de particules est correctement décrit par une équation de Burgers. Nous allons maintenant voir que cette simplification par l'approche de Burgers permet d'appréhender avec aisance d'autres problèmes similaires.

## 5.4 Extension à d'autres systèmes

L'équation de Burgers a été dérivée en 1948 pour modéliser la turbulence hydrodynamique et les chocs, [94]. Nous avons aussi vu qu'elle permet une modélisation correcte de la phénoménologie des bouchons dans le trafic routier, voir chapitre 4. La phénoménologie de



Burgers n'est donc pas restreinte aux écoulements potentiels et notre système s'apparente à de nombreux autres. Je ne vais pas dans cette partie détailler toutes les réussites de cette modélisation mais me concentrer sur les implications physiques de ce calcul.

### 5.4.1 Autres systèmes, même phénoménologie

Les particules soumises à un champ de force externe, comme un champ de gravité, doivent obéir à la même dynamique à grande échelle. On va effectivement pouvoir décrire la perturbation d'une manière similaire. Par contre, le signe du dipôle va parfois être différent. Cela est le cas pour des bulles d'air soumises à la poussée d'Archimède dans un fluide. Dans ce cas là, les particules vont plus vite que le fluide ce qui implique que  $(1 - \mu) < 0$ . En cas de perturbation, la vitesse des ondes de chocs va être supérieure à la vitesse des particules :

$$v_{\text{choc}} = \mu v_{\text{goutte}}^{\infty} (1 + \rho/\rho^*) \quad (5.19)$$

Dans ce cas, les bouchons vont être advectés en dehors du canal fluide en un temps fini et quelque soit la perturbation, ce qui est l'opposé du cas des gouttes présenté précédemment où  $(1 - \mu) > 0$ .

Une expérience montrant ce phénomène a été réalisée par S. et C. Cachot, étudiantes de L3 à Paris 7, dans le cadre d'un projet expérimental au sein de leur formation. L'expérience consiste à créer un train de bulles, avec des défauts, en bas d'une cellule de Hele-Shaw (gap=500  $\mu\text{m}$ , L=1m) remplie de glycérine, voir figure 5.9. Sur cette figure est aussi représenté le diagramme spatio-temporel de l'expérience. Il permet de facilement suivre les trajectoires des particules. Par souci de clarté, j'ai tracé de couleurs différentes le chemin suivi par certaines particules. On s'aperçoit que les paquets denses de particules vont plus vite que les particules isolées. Nous ne disposons pas de mesures quantitatives sur cette expérience.

Par ailleurs, bien que nos expériences ne nous permettent pas d'accéder à des termes supérieures dans l'expansion du gradient, nous allons calculer la relation de dispersion pour des ondes compressives. Nous allons pouvoir sonder cette relation pour toutes les longueurs d'ondes du système.

$$\rho(x, t) = \rho_0 + \epsilon \times \exp [ i\omega t - iqx ] \quad (5.20)$$

On obtient à partir de l'équation 5.11, la relation de dispersion suivante :

$$\omega = v_{\text{goutte}}^{\infty} \left[ 1 - \frac{1}{2\rho^*} \int_1^{\infty} \frac{\cos(qRs)}{s^2} ds \right] \quad (5.21)$$

Notez ici que l'on n'a pas tronqué la portée des interactions. Cela nous donne au final :

$$\omega = v_{\text{goutte}}^{\infty} \left[ 1 - \frac{\rho_0}{2\rho^*} \left( 1 + e^{-|q|R} \right) \right] \quad (5.22)$$

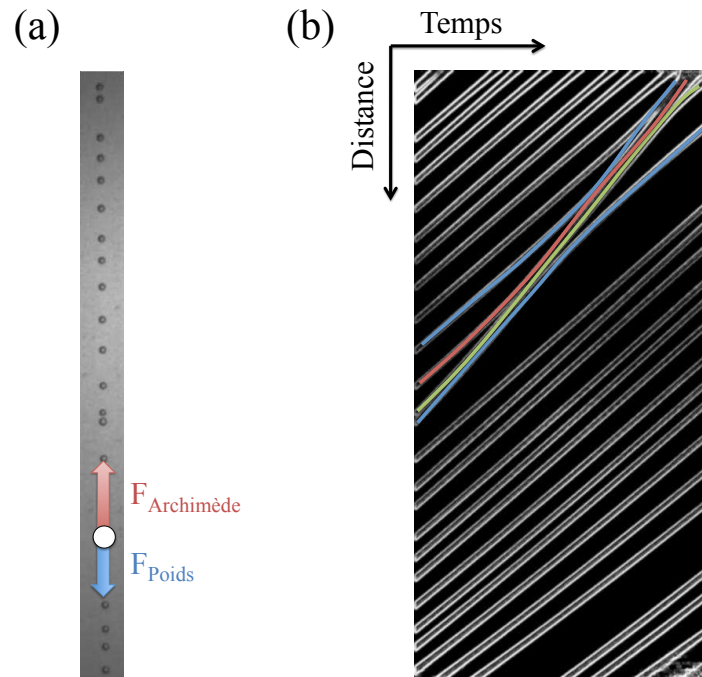


FIGURE 5.9: Train de bulle d'air dans une cellule de Hele-Shaw remplie de Glycérine. Les bulles remontent grâce à Archimède. a) Vue de profil de l'expérience. Le rayon des bulles est de l'ordre  $1 \text{ mm}$ . b) Diagramme spatio-temporel de l'expérience. Les traits blancs correspondent aux chemins suivis par les bulles. Quatre chemins sont colorés par souci de clarté.

Ce calcul nous dit que toutes les longueurs d'onde sont stables. Une onde compressive se propage librement dans un cristal 1D de gouttes, comme cela a été vu expérimentalement par Beatus *et al* [23].

Bien que toutes les longueurs d'onde soient linéairement stables, cette relation nous indique aussi qu'un cristal avec un mélange de plusieurs longueurs d'onde sera nécessairement le lieu de chocs. Cette nuance est très importante et peut avoir de fortes conséquences pour toutes les applications microfluidiques.

#### 5.4.2 Apport de l'étude au contrôle en microfluidique

Le calcul précédent implique qu'un cristal non homogène de particules va nécessairement induire la présence de chocs. Cela montre toute l'importance de pouvoir parfaitement contrôler l'homogénéité de densité lors de la formation d'un cristal 1D en microfluidique.

Je vais illustrer cette proposition d'un exemple concret réalisé au laboratoire. Dans un esprit d'applications microfluidiques, il peut être raisonnable que des personnes veuillent concevoir une puce microfluidique qui aurait pour but de déplacer des triplets de parti-

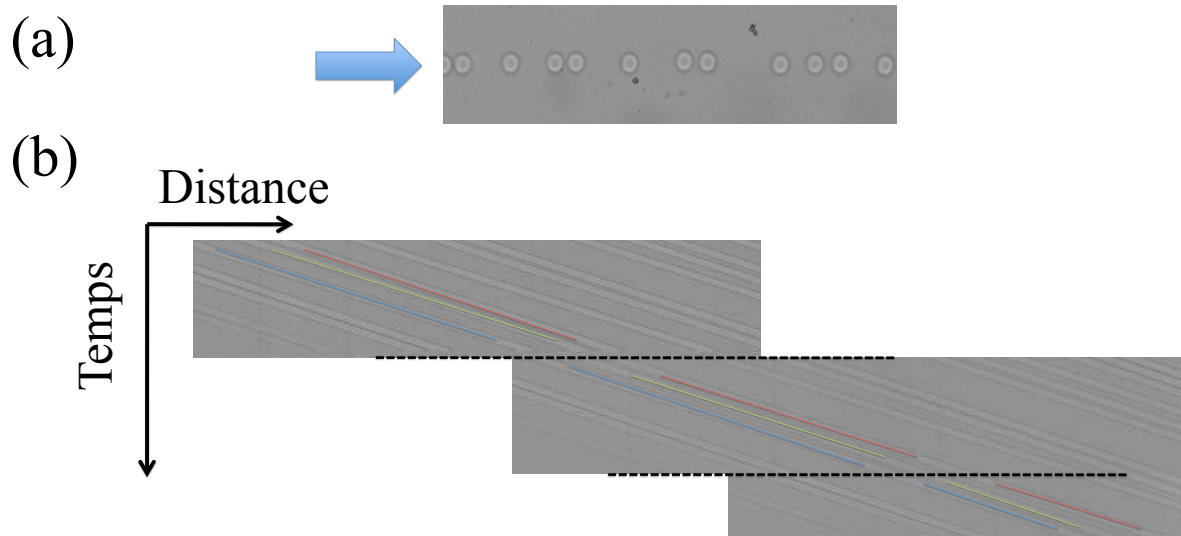


FIGURE 5.10: a) Vue du canal microfluidique. Les particules en PEG (voir chapitre 3 pour la méthode de fabrication) ont un rayon de  $50\mu m$  pour une hauteur de  $20\mu m$ . Initialement, il a été formé un cristal 1D de triplet de particules. b) Diagramme spatio-temporel de l'expérience. Les traits hachurés signifient que le système de visualisation a dû être déplacé. Les couleurs sont un guide pour voir le chemin suivi par trois particules.

cules. Or les conséquences sont dramatiques, voir figure 5.10. Sur cette figure est représentée une expérience faite avec des particules créées *in situ* par la technique de "Flow Lithography", voir chapitre 3. On a créé un cristal de triplet de particules : l'élément de base est constitué de 3 particules de  $50\mu m$  de diamètre distantes de  $50\mu m$  et la maille mesure  $500\mu m$ . Or on s'aperçoit que ce cristal est instable et il se forme des doublets de particules avec des particules entre ces doublets. En effet, la présence d'inhomogénéité de densité conduit nécessairement à la présence de chocs. Cela signifie dans ce cas précis qu'il est impossible de déplacer sans dispersion des groupes de trois des particules confinées dans un écoulement potentiel. Au delà de cet exemple de triplet, on peut uniquement déplacer de manière homogène un cristal de singulets ou de doublets de particules. Ceci est particulièrement important si on désire concevoir des circuits microfluidiques robustes.

Par ailleurs, nous avons vu que la vitesse des ondes de choc dans le cas des gouttes peut être nulle. Cela signifie qu'une perturbation sur un cristal 1D de gouttes peut subsister un temps quasi infini au même endroit. Le temps de la durée de vie d'une perturbation de taille de  $\rho$ , dans un canal microfluidique de longueur  $L$ , est de l'ordre :

$$\tau_{\text{vie}} \propto \frac{L}{v_{\text{goutte}}^{\infty}} \times \frac{1}{\rho - \rho^*} \quad (5.23)$$

On voit donc l'importance de ne pas créer de cristaux 1D de densité proche de  $\rho^*$ , ou alors d'avoir un contrôle parfait sur l'homogénéité de la densité. On peut aussi ici faire

de nouveau une analogie avec le trafic routier. En effet, ce temps de vie d'un bouchon divergeant nous indique qu'il est essentiel d'éviter la formation d'un bouchon sur route, car il aura énormément de mal à se résorber. Toute perturbation, que cela soit une voiture arrêtée sur le bord de la route ou un contrôle visible de vitesse, peut avoir des conséquences à très long terme.

Je tiens aussi à insister sur un troisième point dans ce paragraphe dédié aux applications microfluidiques. Nous avons déjà montré dans le chapitre précédent la présence d'un courant maximal en particule,  $j^*$  au delà duquel, aucune solution stationnaire n'existe. Si on garde à l'esprit les applications microfluidiques, cette barrière doit être prise en compte. Elle nous indique qu'il ne faut pas essayer de trop se rapprocher de cette limite supérieure, au risque de déstabiliser son train de particules. Il me semble que cela doit être à l'esprit de celui qui va concevoir un circuit microfluidique.

Une étude complète sur l'existence et la stabilité de solutions stationnaires pour un cristal 1D de particules en interaction a été ainsi réalisée. Nous avons mis en avant la présence d'un courant critique au delà duquel aucune solution stationnaire n'existe et nous avons montré que la dynamique de ce cristal est régie par une équation de Burgers. Cela est générique aux écoulements potentiels. Ces résultats théoriques apportent des informations nouvelles, utiles à tous concepteurs de puces microfluidiques basées sur l'utilisation de particules. Dans l'objectif de parfaitement comprendre la dynamique d'objets dans une cellule de Hele-Shaw, notre étude s'est poursuivie sur le cas non plus restreint à une dimension mais bidimensionnel. Une étude expérimentale, théorique et numérique est présentée dans le chapitre suivant.

# Stability and non-linear response of 1D microfluidic-particle streams

Nicolas Champagne,<sup>a</sup> Eric Lauga,<sup>b</sup> and Denis Bartolo<sup>a</sup>

Received Xth XX 2011, Accepted Xth XX 20XX

First published on the web Xth XX 20XX

DOI: 10.1039/xx

**We study the dynamic response of 1D microfluidic-droplet streams to finite-amplitude longitudinal perturbations. We demonstrate experimentally that the excitation of localized jams results in the propagation of shock waves. The shock velocity is shown to vanish as the average particle density approaches a critical value thereby leaving long lived disturbance in the spatial organization of the streams. Using a gradient expansion of the hydrodynamic coupling between the advected particles, we then theoretically derive the nonlinear constitutive equation relating particle current to particle density, and show that it leads to Burgers equation for the droplet stream density.**

Numerous microfluidic techniques rely on the streaming of particles in microchannels. In flow cytometry devices, focused streams of microparticles such as cells and colloids are sorted and analysed<sup>1</sup>. In droplet-based devices<sup>2</sup>, liquid droplets are produced and transported at high rates – up to several kHz – and the resulting one-dimensional (1D) droplet crystals form a useful collection of independent microreactors to perform parallel chemical reactions. In the engineering of functional polymeric particles, either by polymerizing prepolymer-based droplets or *in situ* lithographic techniques<sup>3</sup>, one-dimensional streams of solid particles are typically created, and handled in shallow microchannels. As these applications are intended to yield high-throughput analysis, controlling the stability of the 1D streams of microfluidic particles can be a major issue. Several solutions exist to enhance the robustness of the particle transport with respect to transverse perturbations, e.g. using guiding rails along the microchannels<sup>4,6</sup>. However, the stabilization with respect to longitudinal perturbations remains an unsolved problem.

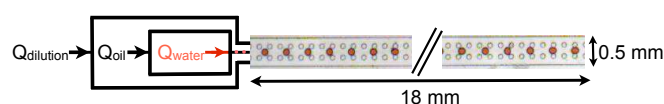
From a fundamental perspective, our understanding of particle transport in microchannels has mostly focused on hydrodynamic phenomena occurring at the single-particle level, including droplet formation and breaking, inertial effects, and lubrication-induced deformations<sup>5</sup>. In contrast, little work has been devoted to the large scale dynamics of 1D particle

streams. Notable exceptions include the investigations of Beatus and coworkers, who demonstrated that 1D droplet crystals are linearly stable, with small perturbations propagating while leaving the crystalline order unchanged<sup>7,8</sup>. In recent work, we have shown that there exists a maximal bound for the stationary current of 1D particle streams driven in Hele-Shaw geometries and in obstacle networks<sup>9</sup>. When the (imposed) particle current exceeds this critical value, long-range hydrodynamic interactions between the advected particles lead to the spontaneous formation of jams, resulting in the longitudinal and the subsequent transverse destabilization of the 1D streams.

In this paper, we study the dynamic response of regular 1D streams (crystals) to finite-amplitude longitudinal perturbations. Using a microfluidic device, we show that the excitation of localized jams results in the propagation of shock waves whose speed vanishes as the average particle density approaches a critical value, thereby leaving long lived disturbance in the spatial organization of the crystals. To account theoretically for this nonlinear dynamics, we use a gradient expansion of the hydrodynamic coupling between the advected particles to derive the nonlinear constitutive equation relating particle current to particle density. Our results show that the polar symmetry of the hydrodynamic interaction kernel governs the dynamic response and the stability of 1D streams.

Our experiment consists in flowing a 1D crystal made by injecting droplets at a constant rate in a straight channel, as illustrated in Fig. 1. We then suddenly increase the injection rate for a short period of time, thereby creating a localized jam along the particle stream. The dynamic response of the stream to this longitudinal perturbation is characterized by analyzing the spatiotemporal evolution of the droplet packing fraction.

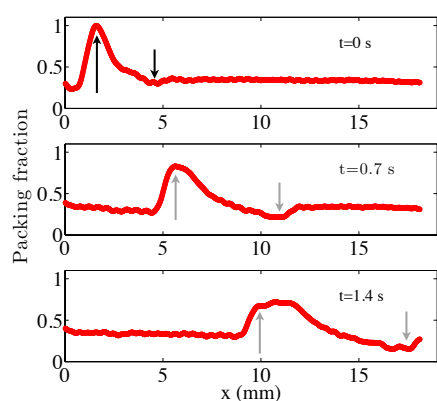
The device is a microfluidic sticker made of thiolene based



**Fig. 1** Design of the microfluidic device. The flow-focusing module is coupled to a dilution module to induce localized jams along the 1D droplet stream,  $\phi_0 = 0.22$ . Colored water droplets are advected by a Hexadecane phase.

<sup>a</sup> PMMH, CNRS UMR 7636, ESPCI ParisTech, Université Paris 6, Université Paris 7, 10, rue Vauquelin, 75231 Paris cedex 05 FRANCE

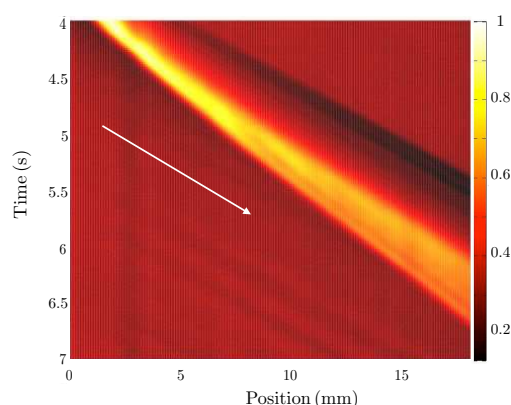
<sup>b</sup> Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California San Diego, 9500 Gilman Drive, La Jolla CA 92093-0411, USA.



**Fig. 2** Time-evolution of the density profiles along the centerline of the channel after a jam induced at  $t = 0$ . Initial density:  $\phi_0 = 0.4$ . The arrows follow the position of the maximum/minimum of the initial density perturbations.

resin (NOA 81, Norland optical adhesive)<sup>10</sup>. The microchannel is straight, with length  $L = 2$  cm, width  $W = 500 \mu\text{m}$  and height  $h = 70 \mu\text{m}$ . Water droplets, colored with a macaroon food-dye, are formed at a conventional flow-focusing junction and injected in the channel (Fig. 1). All the experiments in the paper employ the same droplet diameter,  $b = 140 \mu\text{m}$ . The continuous phase is a mixture of hexadecane oil (viscosity  $\eta = 2\text{mPa}\cdot\text{s}$ ) and span 80 surfactant (3wt%). The average flow velocity of the continuous phase varies between 5 mm/s and 15 mm/s. The typical Reynolds number is smaller than  $10^{-1}$ , and inertia plays thus a negligible role in the observed dynamics. To focus on longitudinal responses, the droplets are guided by cylindrical posts which impede the transverse destabilization of the crystal (diameter  $100 \mu\text{m}$ , spacing  $100 \mu\text{m}$ ).

To create a localized longitudinal perturbation (jam) at the entrance of the channel, we use an additional oil inlet to dilute or concentrate dynamically the droplet stream (Fig. 1). Increasing the flow rate in this dilution channel,  $Q_{\text{dilution}}$ , results in a reduction of the packing fraction. We systematically use the same protocol for the jam formation. First we prepare the system in a stationary state corresponding to a uniform droplet packing-fraction,  $\phi(x, t) = \phi_0$ . We then suddenly stop the dilution flow for a short period of time. Specifically,  $Q_{\text{dilution}}$  is set to 0 after a 250 ms linear ramp, kept at the 0 value for 100 ms, and then reset to its initial value after a 250 ms linear ramp. The resulting peak in the local packing fraction,  $\phi(x, t)$ , and its evolution in time are shown in Fig. 2. Using pictures taken at 60 fps with a 10 bit CMOS camera mounted on a Nikon SMZ1500 stereomicroscope, the density field  $\phi(x, t)$  is defined as the instantaneous number of droplets in a rectangular region of size  $200 \times 75 \mu\text{m}^2$  centered around the position  $x$  and normalized by the number of droplet in the same window

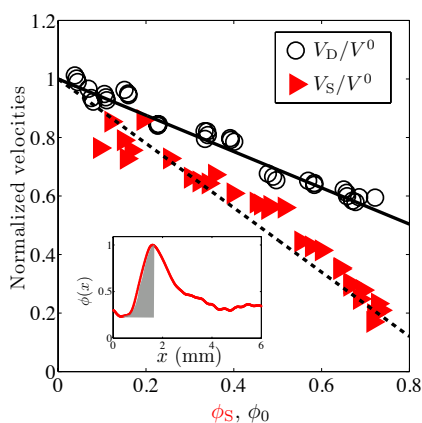


**Fig. 3** Spatiotemporal evolution of the density field,  $\phi(x, t)$ , after a jam induced at  $t = 0$  ( $\phi_0 = 0.4$  initially). Color map: local density. The white arrow indicates the motion of a droplet far from the jam.

for a close-packed crystal. The position  $x$  is defined along the centerline of the channel, with the dilution module connecting the main channel at  $x = 0$ . The origin of time  $t = 0$  is set at the end of the imposed perturbation.

We show in Fig. 2 three snapshots of the density profiles illustrating how the local packing fraction, initially in a homogeneous state ( $\phi_0 = 0.4$ ) relaxes after a jam induced at  $t = 0$ . The full spatiotemporal evolution of the density field within the same experimental conditions is displayed in Fig. 3. Independently of the initial density, all our experiments yield similar phenomenology: the jams are advected along the channel but their shape is not conserved. As seen in Fig. 2, the initial density peak is deformed in an asymmetric manner, with the left front remaining sharp while the right front spreads at a speed comparable to the mean advection velocity. In addition, as the pressure controller used to tune  $Q_{\text{dilution}}$  systematically induces a minute and brief dilution of the droplet stream prior to the jam formation (see Fig. 2), we also observe an asymmetric spreading of this negative density perturbation.

The dynamic response we observe for both positive and negative density perturbations is not compatible with a linear response to the initial longitudinal excitations, and can thus not be described as the linear superposition of dispersive compression waves (phonons)<sup>7</sup>. The breaking of the left-right symmetry in the spreading dynamics indicates that, instead, a non-linear phenomenon governs the relaxation dynamics of the initial jam. The spatiotemporal evolution of the density field in Fig. 3 shows that the sharp fronts propagate at a constant speed, which we denote  $V_S$ , and which depends on the local density  $\phi_S$  at the location of the front. The fronts associated with a positive perturbation propagate slower than the front associated with a negative perturbation. By repeating the same experiment for different  $\phi_0$ , we can measure the explicit



**Fig. 4** Red triangles: Positive front velocity,  $V_S$ , normalized by the velocity of an isolated drop, vs. the front density  $\phi_S$ . Empty circles: Droplet velocity, in the homogeneous state,  $V_D$ , vs. the initial packing fraction,  $\phi_0$  (same normalization). The error bars are below the symbols size. Solid line: best linear fit. Dashed line: theoretical prediction for the shock velocity. Inset:  $\phi_S$  is defined as the average of  $\phi(x)$  over the shaded region.

dependence of the front velocity,  $V_S$ , on the local density,  $\phi_S$ , and the results are plotted in Fig. 4 (red triangles). We obtain a clear linear decrease of  $V_S$  with  $\phi_S$ , which defines a critical packing fraction,  $\phi^*$ , above which the fronts should propagate upstream,  $V_S \equiv V_0(1 - \phi_S/\phi^*)$ ; note that  $V_S(\phi_S = 0) = V_0$  is the velocity of an isolated droplet, which is precisely the velocity of the smallest possible density excitation. A linear fit yield  $\phi^* = 0.8$ . Experimentally, we could not achieve stable uniform crystal of densities higher than  $\phi_0 = 0.7$  over long time scales; above this value, any uncontrolled perturbation lead to transverse destabilization of the 1D streams despite the stabilizing posts. Nonetheless, we measured reductions of the front velocities by a factor of 5 as we increased  $\phi_S$  close to  $\phi^*$ . In addition, the droplet velocity in the homogeneous state,  $V_D$ , was observed to decrease linearly with the packing fraction (Fig. 3, open circles). Consequently, the droplets at the rear of the density peak catch up with the jam, where the density is higher and the droplet velocities lower. Simultaneously, the droplets ahead of the jam move faster, resulting in the widening of the density perturbation. This mechanism, akin to Burgers shocks propagation<sup>11</sup>, is responsible for the formation of stable sharp fronts and asymmetric spreading.

In order to theoretically rationalize our experimental findings, we now introduce a far-field model. We aim at understanding quantitatively how the hydrodynamic coupling between the droplets results in the formation of sharp fronts and the anisotropic spreadings of localized jams. To do so, we derive the local non-linear constitutive equation that relates the density,  $\phi(x,t)$ , to the droplet current,  $j(x,t)$ , which

we write without loss of generality as  $j(x,t) \equiv \mu u(x,t)\phi(x,t)$ , where  $u(x,t)$  is the continuous phase velocity, and  $\mu$  is the droplet mobility. Together with mass conservation,  $\partial_t \phi(x,t) + \partial_x j(x,t) = 0$ , these two equations determine the nonlinear dynamics of  $\phi$ . For a given channel geometry,  $\mu$  depends only on the droplet shape. Since the droplets are deformable,  $\mu$  could implicitly be function of  $u(x,t)$ , but since the capillary numbers are below  $10^{-4}$ , droplets are not deformed by the continuous flow and  $\mu$  can be assumed to be a constant. We measure  $\mu = 0.7$ , which is less than one due to the dissipation in the lubricating film between the droplets and the channel walls, and implies that the droplets disturb the external velocity field,  $\mathbf{u}_0(x,t) \equiv u_0 \mathbf{e}_x$ , of the continuous phase. The longitudinal component of the flow disturbance,  $\delta u(x,t) = u - u_0$ , correlates the displacements of the droplets, and is at the origin of the nonlinear dynamics.

To provide an explicit expression for this hydrodynamic coupling, we make two simplifying assumptions. First, having microfluidic applications in mind, we consider mean flows averaged over the height of the channel and thus describe transport by a potential (Hele-Shaw) flow. Second, we assume a dilute suspension of droplets and treat the hydrodynamics in a far-field sense. In that limit, the flow perturbation induced by a droplet at  $x = 0$  has the symmetry of a source dipole<sup>8,9,12</sup>, and induces an instantaneous flow velocity,  $u_{\text{dip}}(x)$ , at a distance  $x$  given by  $u_{\text{dip}}(x) = -p/x^2$ , if  $x \ll W$  where  $W$  is the channel width, and  $u_{\text{dip}}(x) \sim \exp(-x/W)$ , if  $x \gg W$  due to hydrodynamic screening by the walls. The dipole strength,  $p$ , scales linearly with the area of the droplet in the plane of the flow and with the difference between the droplet speed and that of the surrounding fluid,  $p \sim u_0(1 - \mu)b^2$ . In the dilute limit the flow disturbances can be treated as pairwise additives and therefore the flow perturbation induced by all the advected droplets can be written down as a linear superposition of dipolar singularities,  $\delta u(x,t) = \int \frac{dx'}{b} \phi(x',t) u_{\text{dip}}(x - x')$ . The formula for  $\delta u$  is non-local due to the power-law decay of the hydrodynamic interactions. It also requires regularization at  $x = x'$  to model the finite size of the droplets, which we achieve by defining  $u_{\text{dip}}$  as  $u_{\text{dip}}(x,t) \equiv -p/(x^2 + a^2)$  without loss of generality, where  $a = b/2$  is the droplet radius.

To derive the local current-density constitutive relation, we consider long-wavelength deformations of the droplet stream. We perform a gradient expansion of the hydrodynamic coupling and write thus the droplet velocity as  $\mu \delta u(x,t) = \sum_n a_n \partial_x^n \phi(x,t)$ . In the long wavelength limit, the constitutive relation will reduce then to  $j = \mu u_0 \phi + a_m \phi(x,t) \partial_x^m \phi(x,t)$ , where  $a_m$  is the first non zero coefficient of the expansion for the flow perturbation  $\delta u$ . The linear convolution in real space leading to the flow perturbation,  $\delta u(x,t)$  is best evaluated in Fourier space where we get  $\delta \hat{u}(q, \omega) = b^{-1} \hat{\phi}(q, \omega) \hat{u}_{\text{dip}}(q, \omega)$ , where  $q$  is the wavenumber,  $\omega$  the frequency, and  $\delta \hat{u}(q, \omega)$  the Fourier transform of  $\delta u(x,t)$ . Considering longitudinal excita-

tions with wavelengths larger than the cut-off size ( $qa \gg 1$ ) but smaller than the channel width ( $qW \ll 1$ ), we get  $\delta\hat{u}(q, \omega) = -(\pi p/ab)\hat{\phi}(q, \omega)e^{-|q|a}$  using the Cauchy theorem. At leading order in  $qa$  we have  $\delta\hat{u}(q, \omega) = -(\pi p/ab)\hat{\phi}(q, \omega) + O(|qa|)$ . In real space and time variables, we obtain therefore that the velocity of the droplets decreases linearly with the packing-fraction as  $u(x, t) = u_0[1 - \pi p/(abu_0)\phi]$ . This first prediction is in excellent agreement with the measurements of the droplet velocity in the stationary state (Fig. 4,  $V_D$ , open circles). Using this linear relationship, we obtain the local constitutive relation as  $j(x, t) = \mu u_0 \phi(x, t) [1 - \frac{1}{2}\phi(x, t)/\phi^*]$ , where  $\phi^* \equiv abu_0/(2\pi p)$ . When combined with mass conservation this leads to the nonlinear equation of motion for the density

$$\partial_t \phi + \mu u_0 \left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right) \partial_x \phi = 0. \quad (1)$$

Eq. (1) is a Burgers equation for which, as anticipated in the experimental section, the response to a smooth localized density perturbation is a shock wave<sup>11</sup>. As  $\phi^* > 0$ , Eq. 1 predicts that an initially symmetric jam evolves to form a sharp front on the upstream side while spreading on the downstream side, in agreement with our experimental observations (Fig. 2). The front velocity is given by  $V_S = \mu u_0 (1 - \phi_S/\phi^*)$ , where  $\phi_S$  is the average of the packing fractions across the sharp front<sup>11</sup>. It then follows that  $(\partial_{\phi_S} V_S)/(\partial_{\phi_0} V_D) = 1/2$ , close to our experimental measurement of 0.55 for this ratio (Fig. 4). The agreement between our experimental observations and our theoretical predictions demonstrates thus that the nonlinear response of a 1D droplet stream can be described by a Burgers dynamics arising from long-range hydrodynamic interactions.

Although our experiments did not allow to probe higher order terms in the gradient expansion, we can theoretically compute the dispersion relation of the compression waves at all orders in  $qa$ . Searching for Fourier modes as  $\phi(x, t) = \phi_0 + \varepsilon \exp(i\omega t - iqx)$ , we obtain to first order in  $\varepsilon$  perturbations propagating in a dispersive manner along the 1D stream<sup>7,8</sup>, with a dispersion relation  $\omega = u_0 q \left[1 - \frac{\phi_0}{2\phi^*} (1 + e^{-|q|a})\right]$ . Note however that 1D hydrodynamic crystals having more than one spatial period and long wavelength modulations are not stationary solutions of Eq. (1), and any long wavelength density modulation would ultimately form localized shocks.

Our results have implications beyond our immediate experimental investigation. The Burgers phenomenology is not specific to particles advected by potential flows. The leading order term in the gradient expansion of  $\delta u(x, t)$  always scales as  $\phi(x, t)$  provided that the elementary flow perturbation is an even function of  $x$  ( $a_0$  represents the spatial average of the flow perturbation induced by an isolated particle). Our predictions do therefore not depend on the specifics of the shape of the channel boundaries. More importantly, particles driven by external forces (gravitational, electric, magnetic,...) should

follow a similar large scale dynamic, both in confined geometries and in unbounded fluids. Notably, the sign of the induced dipole depends on the details of the driving. Specifically,  $p$  is positive (resp. negative) for particles moving slower (resp. faster) than the surrounding fluid. A stream of particles driven by an external force (or self-propelling) in a quiescent fluid could be flowed at arbitrarily high current value, as in this case the  $j(\phi)$  function has no upper bound,  $j(\phi) = \mu u_0 \phi(x, t) [1 + \frac{1}{2}\phi(x, t)/\phi^*]$ , and would lead to fast shocks propagating at a finite velocity,  $V_S = \mu u_0 (1 + \phi_S/\phi^*)$ , for all densities as observed in 2D particle streams<sup>13</sup>. In contrast, for advected particles, there exists a maximum current,  $j(\phi^*)$ , to the quadratic constitutive relation<sup>9</sup>, and the shock velocity  $V_S$  vanishes when  $\phi \rightarrow \phi^*$ , leading to long-lived density perturbations with lifetime  $\sim (1 - \phi_0/\phi^*)^{-1}$ . Digital microfluidic setups in which particles are driven by external fields, although they might require involved fabrication steps, would thus be more robust to longitudinal density perturbations.

This work was funded in part by the Paris Emergence 2009 program, the C’Nano Ile de France DypMoA research grant, and the National Science Foundation (grant CBET-0746285).

## References

- 1 C. Simonet and A. Groisman, *Anal. Chem.*, **78**, 5653 (2006) and references therein.
- 2 L.-H. Hung, S.-Y. Teh, R. Lin and A. P. Lee, *Lab Chip*, **8**, 198 (2008).
- 3 D. Dendukuri, and P. S. Doyle, *Adv. Mater.*, **21**, 4071(2009)
- 4 P. Abbyad, R. Dangla, A. Alexandrou and C. N. Baroud *Lab Chip*, **11**, 813 (2011)
- 5 C. Baroud, F. Gallaire, and R. Dangla, *Lab Chip*, **10**, 2032 (2010)
- 6 S. E Chung, W. Park, S. Shin, S. A. Lee, and S. Kwon *Nat. Mater.*, **7**, 581 (2007).
- 7 T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv, *Nature Phys.*, **2**, 743 (2006)
- 8 T. Beatus, R. Bar-Ziv, and T. Tlusty, *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 124502, (2007)
- 9 N. Champagne, R. Vasseur, A. Montourcy, and D. Bartolo, *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 044502, 2010
- 10 D. Bartolo, G. Degré, P. Nghe, and V. Studer *Lab Chip*, **8**, 274 (2008)
- 11 G. B. Witham, *Linear and Nonlinear Waves*, Wiley-Interscience, (1974)
- 12 N. Liron and S. Mochon *J. Eng. Math.*, **10**, 287, (1976)
- 13 T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 114502, (2009). The mechanisms responsible for the reversal of the shocks polarity in 2D streams will be discussed in a forthcoming paper.



## Transport de particules dans un réseau fluidique 2D

Dans cette partie, nous allons nous intéresser au cas où les particules ne sont plus simplement alignées le long de l'axe de l'écoulement. Cela correspond à des expériences où le courant imposé en particules est supérieur au courant d'invasion  $j^*$ . Le réseau est envahi et on cherche à décrire et comprendre cette dynamique bidimensionnelle.

Une étude expérimentale va mettre en avant les caractéristiques principales de cette dynamique ; puis une étude numérique nous permettra de compléter quantitativement ces observations.

### 6.1 Données expérimentales

#### 6.1.1 Expérience sur un réseau étendu d'obstacles

L'expérience est la même que celle décrite dans le chapitre 4. Il s'agit d'un réseau d'obstacles, de dimension  $15 \times 32$ , avec un chemin privilégié. Nous nous intéressons aux courants supérieurs à la valeur critique  $j^*$ . Le paramètre de contrôle est le courant total en particules injectées dans le système. Il est toujours contrôlé grâce à l'actionnement de vannes pneumatiques qui permet de fabriquer des gouttes *in situ*.

On représente sur la figure 6.1a, la variation du nombre de gouttes présentes dans le canal en fonction du temps, pour une valeur  $j < j^*$  (en bleu) et pour une valeur proche mais supérieure à  $j^*$  (en rouge). Le signal pour le faible courant (en bleu), reste proche de la valeur moyenne ; la variabilité sur la taille des particules et les fluctuations de débit

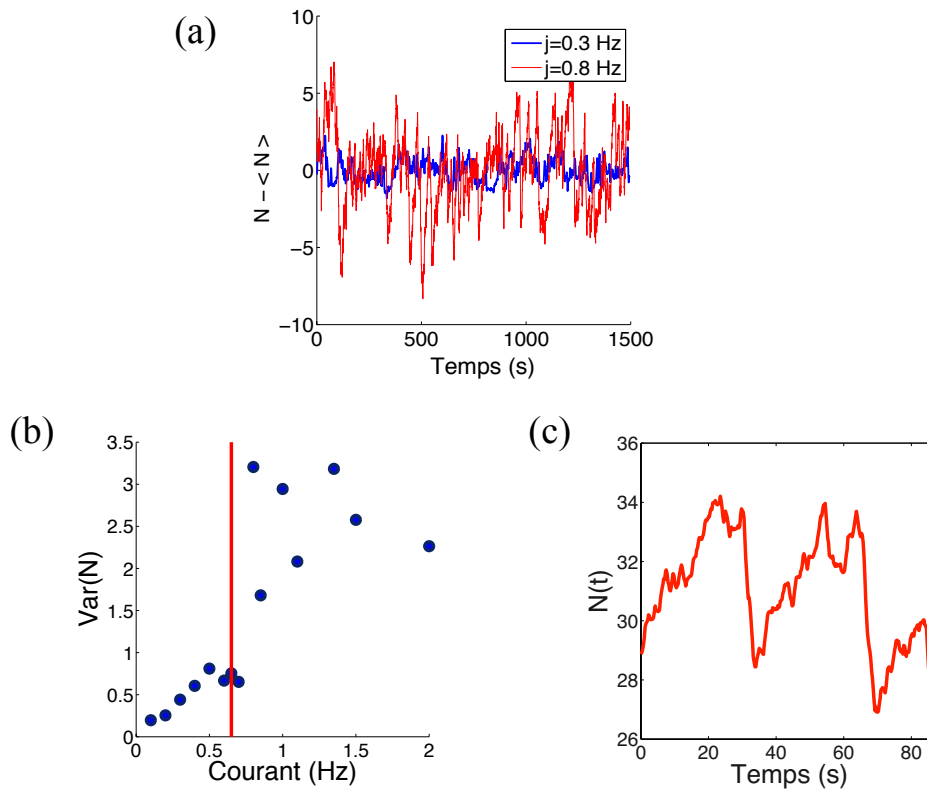


FIGURE 6.1: a) Nombre de gouttes dans le canal central moins le nombre moyen en fonction du temps. Bleu :  $j = 0.3\text{Hz} < j^*$ . Rouge :  $j = 0.8\text{Hz} > j^*$  b) Variance moyenne du nombre de gouttes dans le canal central en fonction du courant imposé. le trait rouge indique le courant critique d'invasion,  $j^*$ . c)  $j = 0.8\text{Hz}$ . Nombre de particules dans le canal central en fonction du temps.

permettent d'expliquer les variations autour de la valeur moyenne. Cela n'est plus le cas pour le courant supérieur à  $j^*$ , les fluctuations sont très importantes. Le nombre de particules présentes dans le canal n'est plus une valeur stationnaire. Plus quantitativement, la variance du nombre de gouttes en fonction du courant d'injection est représentée sur la figure 6.1b. On voit un changement de comportement avant et après le courant d'invasion,  $j^*$  (indiqué par un trait rouge). La variance du signal augmente fortement au dessus de cette valeur. Enfin, on représente sur la figure 6.1c, le signal au dessus de  $j^*$  sur une plus petite durée. Deux échelles de temps (une courte et une longue) émergent de ce signal intermittent. On observe aussi de fortes chutes dans l'amplitude du signal, mettant en jeu le déplacement de plus de 10 gouttes, démontrant la présence d'éjections coopératives au sein du système. Ces deux caractéristiques sont la signature d'effets coopératifs, similaires à des phénomènes d'avalanches. Le système a donc transité de solutions stationnaires stables vers un flot intermittent en particules, caractéristique de mouvements coopératifs. **Il reste à comprendre d'où vient cette coopérativité qui induit cette intermittence.**

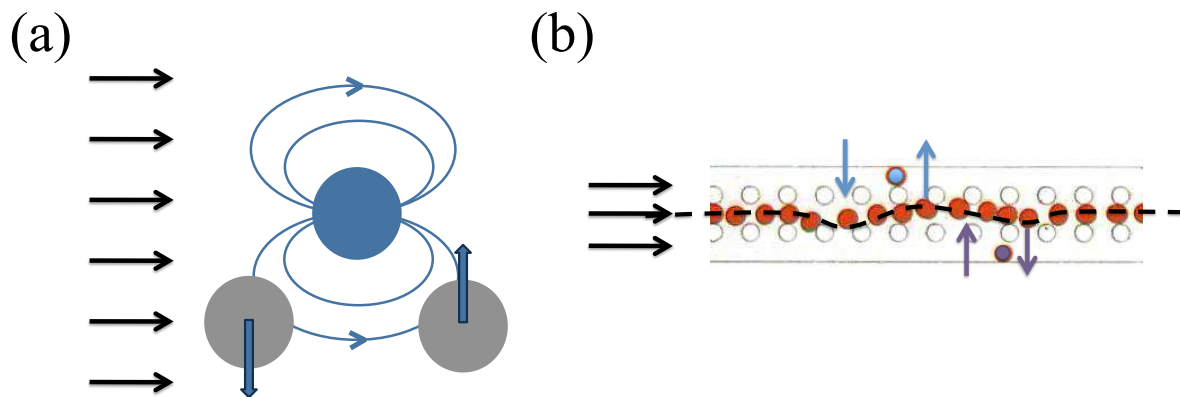


FIGURE 6.2: Interactions transverses. a) Schéma représentant la perturbation dipolaire induite par la particule bleue sur les deux particules grisées. Attraction à avant et répulsion à l'arrière. b) Vue expérimentale de ces effet d'attraction et de répulsion sur une chaîne 1D de particules.

On peut proposer un scénario d'éjections corrélées basé sur la symétrie des interactions dipolaires induites par l'écoulement de particules. En effet, la perturbation induite est représentée sur la figure 6.2a, sur un cristal 1D de particules orienté selon l'axe d'écoulement, par une particule en dehors de l'axe de ce cristal. Cette particule, extérieure à cette chaîne, va avoir tendance à attirer les particules en avant et repousser celles à l'arrière. Si l'interaction est suffisamment forte, cela peut alors déstabiliser cette chaîne et induire l'invasion du réseau. Cela se voit plus clairement sur le cliché expérimental de la figure 6.2b. Deux gouttes sont positionnées de part et d'autre du cristal 1D de particules. On voit que les effets de ces deux particules s'additionnent et la chaîne est fortement perturbée. Les gouttes au centre ne sont alors plus alignées et elles vont alors elles aussi contribuer à perturber ce cristal. Le cliché suivant n'est pas montré, mais cette situation aboutit au départ de gouttes du centre vers les canaux extérieurs (canaux autres que le canal central). Puis la présence de ces gouttes dans les canaux extérieurs déstabilise encore plus fortement la chaîne centrale de particules : cet **effet coopératif** signe le départ d'une avalanche. On comprend par ce biais le mécanisme déclencheur de ces avalanches, il reste à étudier les échelles temps correspondantes pour expliquer l'intermittence observée expérimentalement. Cela permet aussi de comprendre un ingrédient nécessaire à cette phase intermittente, il faut un nombre suffisant de particules dans les canaux latéraux. Or lorsqu'on se place au-dessus mais à proximité du courant critique, le temps entre deux éjections de gouttes dans les canaux latéraux est long. La perturbation induite par une unique particule est trop faible pour créer un effet coopératif. Cela explique pourquoi la variance du nombre de gouttes présentes dans la ligne centrale reste faible pour des valeurs supérieures mais très proche

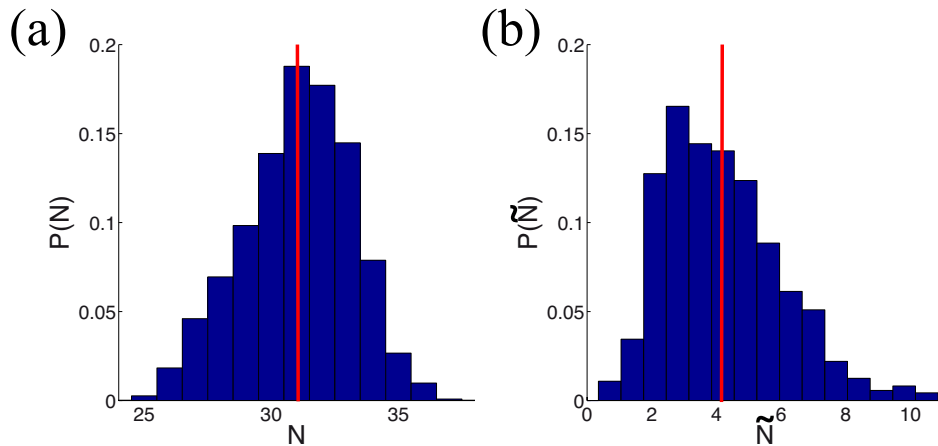


FIGURE 6.3:  $j = 0.8\text{Hz}$ . a) Probabilité de présence de particules dans le canal central. b) Probabilité de présence de particules dans les canaux latéraux. Les traits rouges représentent les moyennes de ces nombres.

de  $j^*$  (voir les deux premiers points au-dessus de  $j^*$  sur la figure 6.1b). À l'inverse cette variance augmente fortement un peu plus loin de cette transition. Il y a un nombre suffisant de particules sur les canaux latéraux, pour engendrer une éjection coopérative de particules.

La forme du signal temporel ainsi que la variance sont donc des signatures de cette intermittence, mais on peut aussi sonder les distributions du nombre de particules à l'intérieur du canal. En effet, on a représenté sur la figure 6.3a, la densité de probabilité de présence du nombre de particules dans le canal central. Pour des valeurs supérieures à  $j^*$ , on peut voir que cette distribution est asymétrique, non gaussienne. Ceci est aussi une marque d'événements rares corrélés. De la même manière, nous avons représenté la distribution du nombre de gouttes dans les canaux externes,  $\tilde{N}$ , pour la même expérience. Cette distribution non plus n'est pas gaussienne ; la valeur moyenne, représentée en rouge, n'est pas la valeur la plus probable.

Nous avons aussi calculé ces distributions pour des valeurs importantes en courant. On s'aperçoit qu'au delà d'un certain seuil en courant ( $j > \sim 1,5 \times j^*$ ), ces distributions deviennent gaussiennes. On peut qualitativement interpréter ce comportement. Pour des valeurs grandes de courant, les bouchons sont continuellement formés et cassés ; des gouttes circulent continuellement dans les canaux latéraux. Le cristal 1D de gouttes présentes dans le canal central est continuellement déstabilisé. La variance du nombre total de gouttes dans le canal reste élevée mais il n'émerge plus de temps caractéristique long pour ces avalanches qui ont sans cesse lieu.

Nous avons mis en évidence cette phase intermittente pour des courants supérieurs au

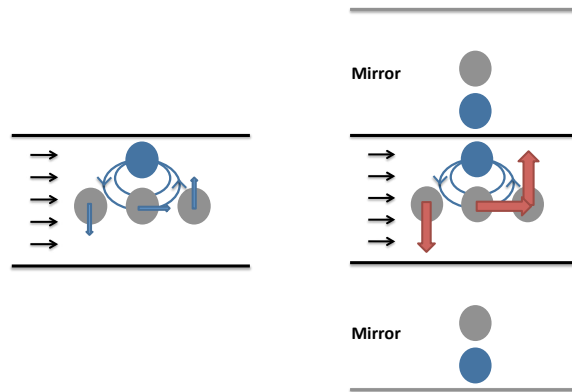


FIGURE 6.4: La présence de paroi impose une condition sur la forme dipolaire des perturbations. Un tableau d'images des particules permet de vérifier cette condition. Les deux premiers éléments de ce tableau d'image infini sont ici représentés. Cela tend à augmenter les perturbations transverses sur les particules au centre du canal par rapport au cas non restreint transversalement.

courant critique. Une analyse quantitative à partir de ces données expérimentales n'est pas possible, les variations des paramètres de l'expérience étant trop important.

Pour essayer de mieux interpréter ce système, nous avons expérimentalement étudié un réseau moins étendu dans la dimension transverse. Nous allons voir pourquoi mais aussi quels en sont les résultats.

### 6.1.2 Expérience sur un réseau d'obstacles restreint transversalement

Cette phase intermittente est difficilement observable dans les réseaux présentés précédemment. Nous avons cherché à exacerber le caractère coopératif induit par la présence d'une particule dans un canal extérieur.

Pour réaliser cela expérimentalement, nous avons pris le parti de contraindre les particules sur trois canaux latéraux. Cela empêche les particules qui viennent d'être éjectées d'aller loin de la ligne centrale et donc de peu déstabiliser le train de gouttes central. Cela est la première raison qui explique pourquoi on s'attend à un effet plus important.

De plus, la présence d'une particule dans un réseau limité transversalement va avoir une importance relative plus grande, comme cela se comprend à travers le schéma de la figure 6.4. En effet, nous avons vu dans les chapitres précédents que la perturbation induite par la présence d'une particule dans un plan infini est dipolaire. Or, cette solution doit respecter les conditions aux limites qui impliquent notamment la nullité de la vitesse transverse au niveau de la paroi du canal. Pour réaliser cette condition de flux nul transverse, nous introduisons un tableau d'images de dipôles, comme cela se fait en électrostatique.

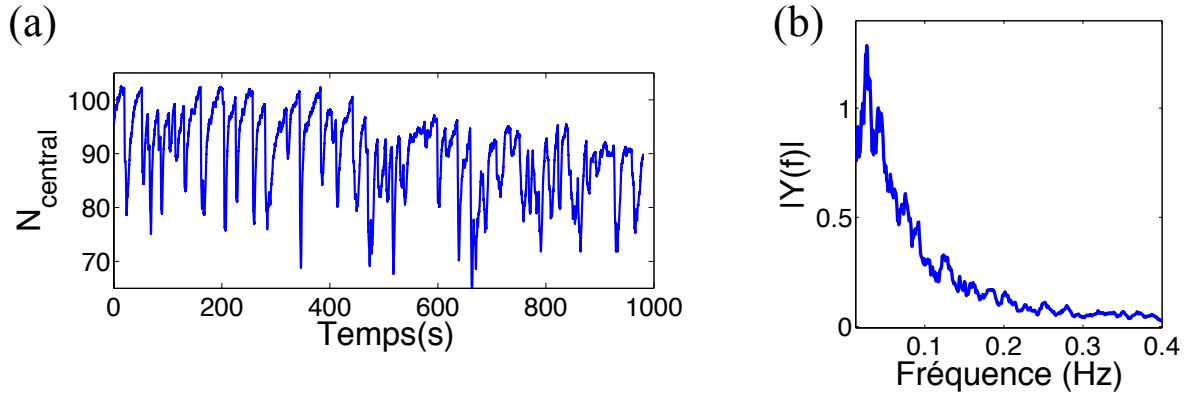


FIGURE 6.5:  $j = 1.1 \times j^*$ . a) Nombre de gouttes dans le canal central en fonction du temps. b) Transformée de Fourier du signal précédent. Un pic caractéristique ressort de cette analyse.

Les deux premiers éléments de ce tableau sont représentés sur la figure 6.4. La somme de tous ces dipôles permet de respecter cette condition limite. Le calcul confirme une augmentation de l'attraction à l'avant et de la répulsion à l'arrière induite par une particule sur un canal parallèle à un cristal 1D. Cela est la deuxième raison qui explique pourquoi on s'attend à plus facilement observer des avalanches de forte amplitude.

Nous avons donc réalisé des expériences sur un réseau d'obstacles circulaires de dimension  $3 \times 90$ , de pas  $200 \mu m$  et dont la taille des obstacles est de  $100 \mu m$ . Le paramètre de contrôle de ces expériences est là aussi le courant en particules, dicté par les vannes solénoïdes. La dynamique intermittente est particulièrement mise en valeur dans ces expériences, comme cela se voit sur le signal temporel du nombre de gouttes présentes dans le système sur la figure 6.5a ( $j = 1,1 \times j^*$ ). Ce signal temporel montre de nombreuses avalanches avec la présence de deux temps caractéristiques. Après analyse, le plus court est de l'ordre du temps de passage d'une particule dans le système :

$$\tau_{\text{éjection}} \sim \frac{L}{V} \quad (6.1)$$

Avec  $L$  la longueur du système et  $V$  la vitesse moyenne des gouttes. Le second correspondant au temps d'attente avant le déclenchement d'une avalanche. Il est plus difficile à relier aux autres paramètres du système. On peut facilement l'extraire à travers le spectre de puissance associé à  $N(t)$ , voir figure 6.5b. Un pic caractéristique ressort bien de cette analyse pour cette expérience à ce courant particulier. Mais, malgré nos efforts nous n'avons pas réussi à obtenir des temps caractéristiques sur une gamme suffisante en courant pour caractériser quantitativement les variations de ce temps et de l'amplitude des avalanches en fonction du courant. Nous pouvons seulement dire que ce temps caractéristique diminue

lorsqu'on augmente le courant. Mais aucune conclusion sur la forme de cette décroissance ne peut être donnée. La variabilité des paramètres de l'expérience est trop importante pour que le système déclenche des avalanches pour un temps caractéristique précis. La variation de la taille des particules est particulièrement dommageable ; une particule d'une taille plus grande va plus facilement créer un bouchon et donc une avalanche.

Au-delà d'une certaine valeur en courant, une analyse spectrale ne permet plus d'obtenir un temps caractéristique, à cause de la formation et de la destruction continue de bouchons.

Ainsi, la variabilité de nos paramètres expérimentaux (taille des particules principalement) est trop grande pour quantitativement interpréter les temps caractéristiques de l'expérience. N'ayant pu analytiquement résoudre ce problème, on a alors décidé de simuler numériquement ces expériences pour comprendre plus en détail cette phénoménologie.

## 6.2 Modélisation numérique du problème

Nous ne cherchons pas ici à simuler directement les interactions dipolaires entre particules. Nous prenons le parti de modéliser notre système aux travers des mêmes hypothèses que celles du chapitre 4.

### 6.2.1 Description du code

Le modèle décrit dans les chapitres précédents peut être étudié numériquement. Il faut écrire les équations qui guident la dynamique du fluide, sur le réseau représenté sur la figure 6.6. L'écoulement est de type Stokes et nous pouvons écrire une loi de Darcy sur chaque lien du réseau, de résistance hydrodynamique  $R$ . On écrit aussi la conservation du débit à chaque noeud. Cela s'écrit en un point  $i$  :

$$\left\{ \begin{array}{ll} Q_i = R_i \Delta P_{\text{lien}} & \text{Loi de Darcy} \\ \sum_{i \in \text{noeud}} Q_i = 0 & \text{Conservation du débit} \end{array} \right. \quad (6.2)$$

Ensuite on modélise, comme précédemment, la présence d'une particule comme une augmentation de la résistance du canal dans lequel elle est présente.

$$R_i = R_0 + n_i \times \delta R \quad (6.3)$$

Les particules se déplacent donc à vitesse constante sur chaque lien du réseau.

Le coeur du programme concerne le traitement des gouttes et de leur déplacement sur

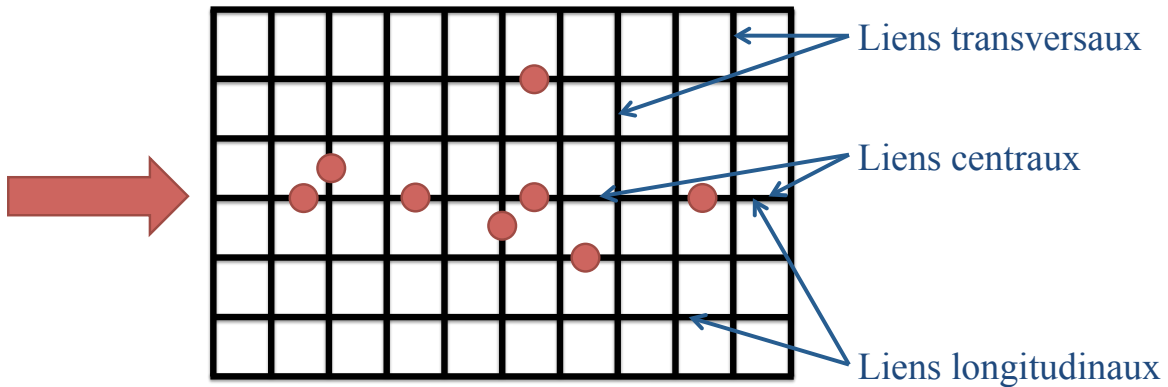


FIGURE 6.6: Réseau discret modélisé numériquement. La présence d'une particule dans un lien du réseau modifie la résistance de ce lien.

le réseau. La seule partie technique concerne la résolution du système linéaire déterminant l'écoulement dans le réseau de résistance. On utilise un réseau rectangulaire de taille variable. Pour calculer l'écoulement dans le réseau pour une configuration de résistances donnée, on écrit les lois de Millman sur l'ensemble des noeuds du réseau, comme résumé ici sur la pression au noeud  $\alpha$ ,  $P_\alpha$  :

$$P_\alpha = \frac{\sum_{i \in \alpha} \frac{P_{i,\alpha}}{R_i}}{\sum_{i \in \alpha} \frac{1}{R_i}} \quad (6.4)$$

On a noté ici  $P_{i,\alpha}$  le noeud lié au noeud  $\alpha$  par le lien  $i$ . Un noeud peut être relié à 2, 3 ou 4 autres noeuds en fonction de sa position dans le réseau (un coin, un bord ou au centre). On suppose un réseau de longueur  $N$  et de largeur  $M$ . Il y a donc  $N \times M$  noeuds de pression. Nous pouvons donc écrire  $N \times M$  équations de Millman avec  $N \times M$  pressions inconnues. Or ce système d'équation est lié et nous devons imposer la pression à au moins deux noeuds pour avoir une unique solution. Il suffit ensuite de résoudre ces équations linéaires pour connaître la pression à chaque noeud du réseau. On obtient alors aisément le débit sur chaque lien grâce à l'équation 6.2.

Au niveau de la résolution numérique de ce problème, nous regroupons dans une même matrice, *MILLMAN*, de taille  $(NM \times NM)$ , l'ensemble de ces lois de Millman, de telle manière que  $MILLMAN * P = 0$ , avec  $P$  un vecteur de taille  $(NM \times 1)$  regroupant l'ensemble des pressions à chaque noeud du réseau. On inverse ensuite la matrice concernant les lois de Millman, en fixant la pression à au moins deux noeuds sur l'ensemble du réseau. Pour cette étape, l'utilisation des matrices numériques de type **sparse** [97], qui permettent d'écrire et de calculer facilement des matrices comportant de nombreux 0 permet une diminution importante du temps de calcul.

De plus, pour un gain de temps et éviter les erreurs, nous avons décidé que notre code soit **dicté par les événements**. On calcule les pressions à chaque noeud uniquement lorsqu'une



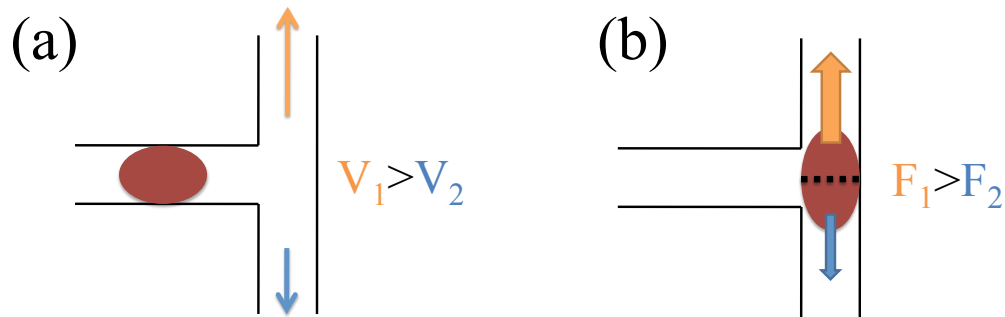


FIGURE 6.7: Jonctions de 3 canaux. a) Une particule arrive à une jonction où la voie du haut est plus rapide. b) 2 forces s'appliquent à la particule à la jonction. La force du haut est supérieure car la vitesse est plus grande. La particule s'écoule dans le canal du haut.

particule change de lien ou pour l'injection d'une nouvelle particule. Cette méthode permet de calculer l'écoulement dans tout le réseau de façon très efficace et permet également de n'avoir à inverser cette matrice *MILLMAN* (point limitant de la simulation) qu'un nombre minimal de fois. Il n'y a donc pas de pas de temps fixe dans notre simulation.

Je viens de décrire un programme qui décrit bien le comportement d'un fluide bidimensionnel en écoulement de Stokes dans un réseau contenant un certain nombre de particules. Il convient d'ajouter des règles phénoménologiques pour correctement décrire le comportement de ces particules sur le réseau. La première hypothèse consiste à considérer que la vitesse des particules est proportionnelle à la vitesse du fluide :

$$v_i = \mu v_{\text{fluide}} \quad (6.5)$$

Avec  $\mu$  une constante. Nous avons fait la même hypothèse pour modéliser notre système expérimental. Nous choisissons arbitrairement  $\mu = 1$ ; ce choix ne modifiant pas la physique associée à ce problème.

La deuxième hypothèse porte sur le changement de lien d'une particule lorsque celle-ci arrive à un noeud du réseau. Ce choix est particulièrement important car il va dicter en partie la physique de notre simulation.

### 6.2.2 Modélisation du changement de lien du réseau

Notre modélisation de changement de lien suppose que nous cherchons à représenter des **particules déformables** et que nous sommes en géométrie confinée, ie, **la taille des particules est comparable à celle des canaux**.

Prenons tout d'abord le cas simple d'un jonction en T à deux choix, comme dans la figure 6.7a. Une fois arrivée à la jonction, cette particule déformable, stoppée par la paroi, va

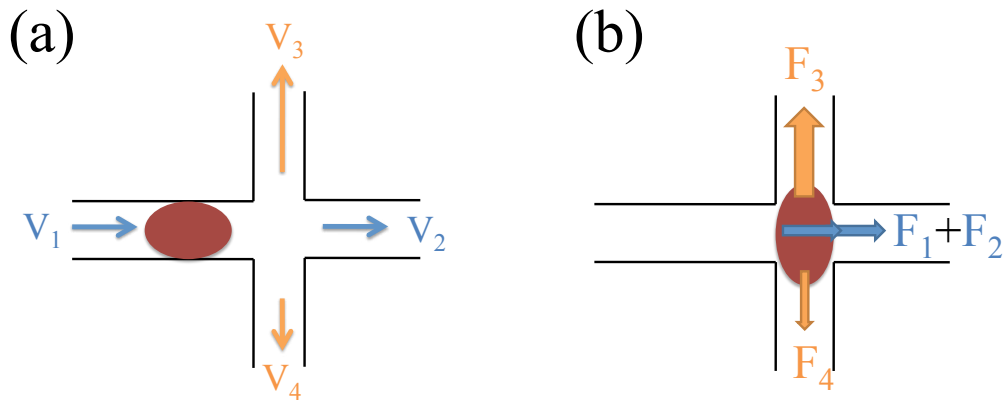


FIGURE 6.8: Jonctions en croix. a) Une particule arrive à une jonction avec 3 choix de canaux possibles. b) 3 forces s'appliquent à la particule à la jonction. Elle reste un temps fini dans la jonction. On va faire un choix balistique pour représenter cette phénoménologie.

subir deux forces opposées, représentées sur la figure 6.7b. Ces forces sont proportionnelles au gradient de la vitesses du fluide dans les deux canaux et aussi à la surface de la particule déjà engagée dans l'une ou l'autre des deux branches. Il existe un point de stagnation dans ce type de géométrie ; le gradient de vitesse est donc proportionnel à la vitesse dans les canaux. Les particules sont de taille comparable à la taille des canaux, la surface initiale en contact avec chaque canal est donc égale. Le choix effectué par la particule entre les deux canaux dépend alors uniquement de la vitesse du fluide dans chacune des deux branches. La particule choisira le lien où la vitesse est la plus rapide, comme cela a été vérifié expérimentalement ([98], [36] et [46]). Le choix entre l'un ou l'autre des canaux sera d'autant plus long que la différence de vitesse est faible ; la force motrice étant proportionnelle à cette différence de vitesse.

Prenons maintenant le cas, plus complexe, de notre réseau avec une jonction en croix, comme représenté sur la figure 6.8. (Ce cas a été en partie discuté [99], mais dans un autre contexte, celui de la modélisation de filtre avec des particules solides.)

Dans cette configuration, la particule ne reste qu'un temps fini dans le noeud ; elle ne peut pas être bloquée par une paroi comme dans le cas précédent. Ainsi la vitesse avec laquelle arrive la particule (proportionnelle à la vitesse du canal d'arrivée) a une implication sur son choix futur. Si la particule est trop rapide, elle n'aura pas le temps de se déformer sous l'effet des forces visqueuses qui tendent à la faire changer de canal. Cela introduit un premier temps caractéristique de choix, qui est typiquement inversement proportionnel à la somme des vitesses des canaux longitudinaux ; soit :

$$\tau_{\text{longitudinal}} \sim \frac{1}{V_1 + V_2} \quad (6.6)$$


- 
- ✓ Définition de la matrice de résistance en fonction de la présence des particules.
  - ✓ Calcul des pressions et débits sur chaque lien du réseau, *via les matrices SPARSE*.
  - ✓ Calcul des temps d'arrivée à une intersection, *pas de temps dicté par les événements*.
  - ✓ Choix du prochain événement : une goutte arrive à un nœud ou une goutte est injectée.
  - ✓ Injection d'une particule ou changement de canal pour la particule concernée.
  - ✓ Déplacements des autres particules.

FIGURE 6.9: Les différentes itérations du programme.

Un deuxième temps caractéristique entre en jeu et correspond au temps que va mettre la particule immobile au centre de la jonction pour rejoindre l'un des canaux transverses ; soit :

$$\tau_{\text{transverse}} \sim \frac{1}{\|V_3 - V_4\|} \quad (6.7)$$

Notre critère de choix consiste à comparer ces deux temps. Notre condition de changement de direction s'écrit alors exactement :

$$\|V_3 - V_4\| > \alpha(V_1 + V_2) \quad (6.8)$$

Si cette condition est vérifiée, la particule va dans le canal transverse où la vitesse est la plus grande.  $\alpha$  est relié à l'angle que suivrait la particule si la jonction était infiniment grande. De ce point de vue là, notre approche est de type **ballistique**.

Cette condition de changement de canal ainsi définie représente bien la physique de notre système. Nous fixons cette constante à 1 dans notre programme. Il s'agit de la dernière pierre de notre programme dont les itérations sont résumées sur la figure 6.9.

### 6.2.3 Validation du code

Avant de s'intéresser plus en détail à la possibilité qu'offre ce code pour modéliser une dynamique intermittente, nous allons le valider sur quelques mesures simples. Nous choisissons dans toute la suite du chapitre un échelle d'unité telle qu'un lien du réseau soit de longueur 1 et que la résistance hydrodynamique d'un lien soit égale à 1.

Intéressons nous tout d'abord à la forme de la perturbation induite par la présence d'une particule dans ce réseau. Nous avons simulé un réseau carré de taille  $250 \times 250$  et dont les résistances hydrodynamiques,  $R_0$ , sont toutes égales à 1 et de longueur égale à 1. Nous avons alors placé au centre du réseau, une particule de résistance hydrodynamique  $\delta R = 5$ .

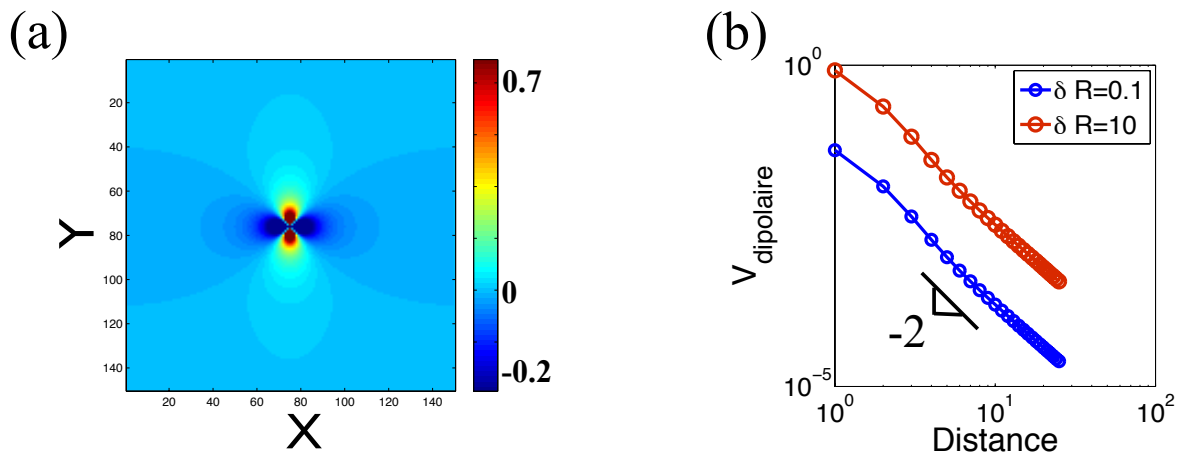


FIGURE 6.10: Perturbation induite par la présence d'une particule située au centre d'un réseau carré de dimension  $250 \times 250$ . a) Perturbation par rapport à la vitesse longitudinale de l'écoulement. b) Décroissance de la perturbation en fonction de la distance à la particule pour deux valeurs de  $\delta R$ , 0.1 et 10. La représentation en logarithmique montre la décroissance en  $1/d^2$  attendu pour cette vitesse dipolaire.

On impose entre les bords gauches et droits une différence de pression de la manière suivante : tous les noeuds du bord gauche sont fixés à une pression de 1 tandis que tous les noeuds du bord droit sont fixés à une pression égale à 0.

Sur la figure 6.10a est représenté la perturbation à la vitesse engendrée par cette particule. Nous avons représenté en échelle de couleur sur la figure 6.10a la vitesse dipolaire, c'est à dire la différence de vitesse du fluide entre le réseau à vide et le réseau avec cette particule (cette vitesse est divisée par la vitesse moyenne du réseau à vide, sur la figure 6.10a uniquement, pour normaliser cette valeur). On s'aperçoit que cette perturbation est bien de type dipolaire avec une décroissance en  $1/d^2$  ( $d$  est la distance à la particule); comme on peut le voir sur la figure 6.10b. On note aussi sur cette figure que cette perturbation est directement proportionnelle à  $\delta R$ .

Nous allons maintenant étudier l'évolution de cette perturbation lorsqu'on diminue la dimension transverse du réseau. Il a été montré par Beatus *et al* [24] pour une particule circulaire dans une cellule de Hele-Shaw que la portée des interactions décroît exponentiellement en  $e^{-d/W}$ , avec  $d$  la distance à la particule et  $W$  la largeur du réseau. On étudie un réseau de taille  $W \times 500$ , avec  $W$  la dimension transverse du canal variant entre 3 et 30. Comme précédemment les pression sur les bords sont fixées telles que  $\Delta P = 1$ . Une particule de résistance  $\delta R = 5$  est placée au centre. On représente sur la figure 6.11a, la vitesse dipolaire en fonction de la distance à la particule. Tout d'abord, on voit que cette vitesse dipolaire diminue fortement au delà d'une certaine distance. La décroissance au delà de

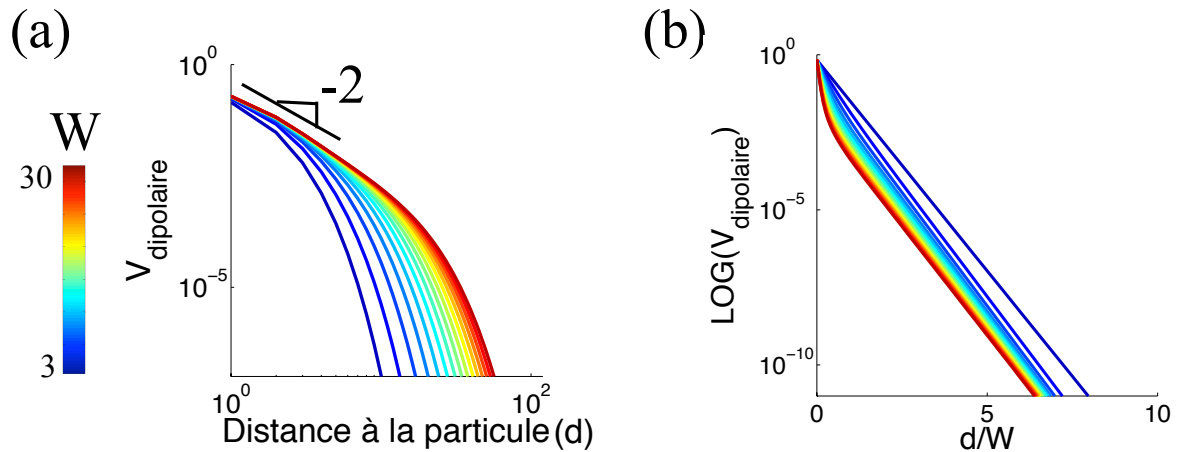


FIGURE 6.11: Vitesse dipolaire induite par une particule de résistance  $\delta R = 5$  pour un réseau de taille  $500 \times W$ ,  $W$  étant la dimension transverse du réseau variant entre 3 et 30. a) Vitesse dipolaire en fonction de la distance. L'échelle de couleur à gauche du graphe indique la dimension transverse du réseau. b) Représentation Lin-Log en fonction de  $(d/W)$ .

cette distance est bien exponentielle, comme on voit sur la figure 6.11b, où cette vitesse est représentée en lin-log. De plus cela est tracé en fonction de la quantité  $(d/W)$ . Les pentes des décroissances sont similaires dans cette représentation pour les différentes largeurs de circuit, ce qui est similaire au résultat de Beatus *et al.*

Enfin, on a aussi vérifié que la perturbation est indépendante de la dimension longitudinale du réseau si celle-ci est supérieure à la dimension transverse.

Ces résultats statiques nous permettent de valider notre approche numérique du problème. Nous allons maintenant nous intéresser plus en détail à des résultats sur la dynamique de ce système numérique.

## 6.3 Résultats numériques

### 6.3.1 Relation constitutive 1D

Pour comparer cette approche numérique à nos résultats du chapitre 4, on étudie la variation de la vitesse des particules en fonction de la densité en particule, pour des particules réparties de manière homogène dans le réseau. La densité 1D est définie comme le nombre de particules par lien dans les liens centraux du réseau. On représente sur la figure 6.12 le courant en particules normalisé par la vitesse d'une particule isolée pour des valeurs de  $\delta R$

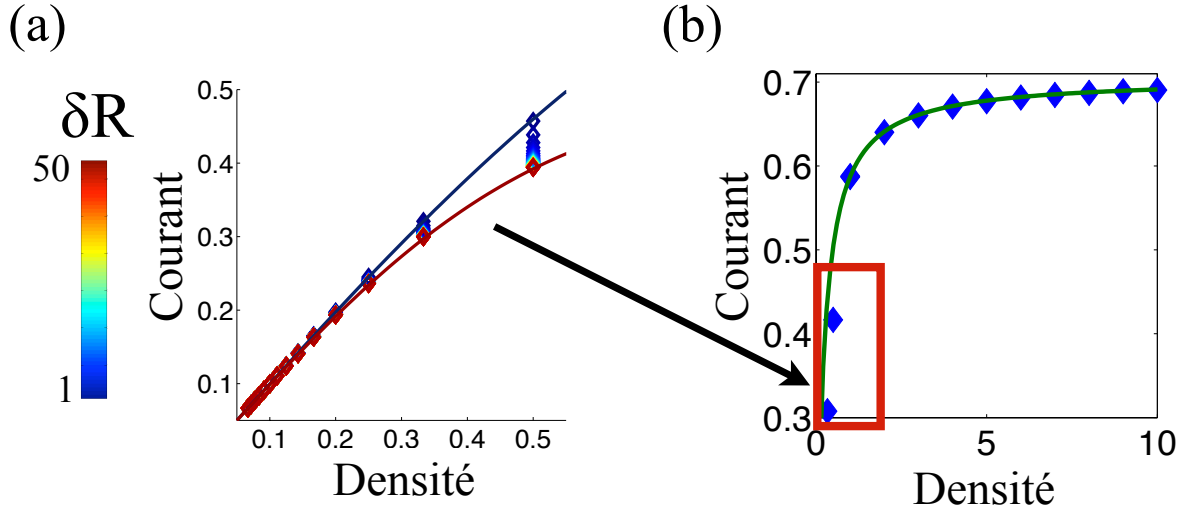


FIGURE 6.12: Losanges : courant des particules en fonction de la densité, normalisé par la vitesse d'une goutte isolée. Réseau de taille  $200 \times 50$ . a)  $\rho < 0.5$ . Chaque couleur représente un  $\delta R$  différent variant de 1 (bleu) à 50 (rouge). Lignes : approximation du chapitre 4,  $\tilde{j} = \frac{1}{1+\beta_1\rho^2}$ . b)  $\rho > 0.5$ .  $\delta R = 5$ . Ligne verte : approximation réseau connecté,  $\tilde{j} = \frac{\rho}{1+\beta_2\rho}$ .

variant de 1 à 50. Pour des densités faibles, notre modélisation numérique reproduit une variation du courant de la forme  $j = \rho/(1 + \beta_1\rho^2)$ , comme pour notre modèle analytique du chapitre 4, comme on cela est représenté sur la figure 6.12a. Mais pour toutes les valeurs de  $\delta R$ , le coefficient  $\beta_1$  est inférieur à 1, signifiant que le maximum du courant est atteint pour des valeurs de densité supérieures à 1. Bien que la perturbation induite par une particule soit proportionnelle à  $\delta R$ , toutes ces relations atteignent un plateau indépendant de  $\delta R$  car la vitesse d'une particule isolée diminue également avec  $\delta R$ . Nous avons donc réalisé des simulations pour des densités supérieures à 1 ; on autorise la présence de plusieurs particules par lien.

La relation constitutive entre courant et densité est représentée sur la figure 6.12b. Lorsque la densité est supérieure à 1, cette relation ne suit absolument plus la loi calculée au chapitre 4. La dynamique est différente. Pour ces régimes concentrés, c'est la présence des particules qui prédomine sur leur vitesse et non plus la présence de leurs voisins. En effet, supposons une répartition homogène des particules sur le canal central. Les pressions des noeuds extrémaux sont fixés et on a entre ces 2 points un certain  $\Delta P$ . Le réseau est supposé plus long que large et si on ne considère que les particules au centre, loin des bords, chaque particule voit la même répartition de particules en avant et en arrière. Les perturbations sont donc symétriques. Ainsi la différence de pression entre chaque noeud selon cette ligne centrale doit être constante. Elle est nécessairement égale à  $\Delta P/M$ , avec

$M$  le nombre de liens longitudinaux. On obtient alors la vitesse sur chaque lien central d'indice  $i$  :

$$j = n_i \times v_i = n_i \frac{\Delta P / M}{R_0 + n_i \delta R} = j^* \times \frac{\rho}{R_0 / \delta R + \rho} \quad (6.9)$$

Avec  $j^* = \frac{\Delta P}{M \delta R}$ . Cette formule ajuste parfaitement nos données numériques pour des densités élevées (figure 6.12b, courbe en vert). Le raisonnement précédent n'est valable que lorsque le réseau est connecté ( $\rho > 1$ ). Cette relation constitutive a pour conséquence que la dynamique est modifiée par rapport à notre cas expérimental. Mais le point essentiel est qu'il existe toujours un courant maximum, comme décrit dans les chapitres précédents, mais **la densité du courant maximum tend vers l'infini**,  $\rho(j^*) \rightarrow \infty$ .

Par ailleurs cette expression signifie que pour ce régime de haute densité, notre système 1D est similaire à un tube que l'on remplit de particules, comme décrit dans les articles Cybulski *et al* ([43] et [42]). Mais il est important de noter que cette relation n'est pas un artéfact du contrôle en pression, et non en débit, du fluide. En effet, des simulations avec contrôle en débit aboutissent au même résultat. On voit ici la différence fondamentale entre notre système et un simple tube qui se remplit. Dans le cas du tube, avec un contrôle en débit, la vitesse des particules est constante. Mais dans notre système, le fluide peut s'écouler sur des liens autres que les liens centraux et la vitesse des particules est alors dépendante de la densité.

Cela pose aussi la question de la pertinence de ce modèle numérique pour simuler notre système expérimental. En effet, dans cette configuration, ce modèle ne représente pas totalement notre système bien que nous ayons eu la même approche correspondant à une augmentation locale de la résistance. La différence peut venir du fait que dans cette simulation, les particules passent un temps nul au niveau du noeud ; elles sont toujours à l'intérieur d'un lien. Cette différence est fondamentale en comparaison de l'expérience du réseau d'obstacles dans lequel les particules passent beaucoup de temps au niveau des noeuds. De cette manière, les particules modifient tout autant la résistance des liens longitudinaux que transversaux. Un raffinement envisageable serait de considérer la présence d'une particule comme une augmentation locale de résistance hydrodynamique de deux canaux longitudinaux et de deux canaux transverses. Mais cela demande alors un réseau beaucoup plus étendu pour simuler une taille de système similaire et donc un temps de calcul beaucoup plus grand (en  $L^2$  environ, avec  $L$  la taille du réseau).

Mais nous avons développé ce modèle pour appréhender la dynamique intermittente du système. Or, nous verrons plus loin que ce modèle numérique minimal reproduit bien ce type de dynamique. Le point important est qu'il reproduit parfaitement la présence d'un courant maximum, au-delà duquel il n'y a plus de solutions stationnaires. Cela se voit très bien dans l'étude du régime transitoire, c'est à dire le remplissage du réseau initialement

vide, que nous allons développer dans la prochaine section.

### 6.3.2 Régime transitoire 1D

L'expression du courant du paragraphe précédent va nous permettre de décrire le régime transitoire 1D. On considère une expérience dans laquelle on impose le courant  $j$  en particules ; le réseau est initialement vide. Les particules sont injectées dans le premier lien central.

On écrit la variation du nombre de particules au cours du temps. Durant un temps  $dt$ ,  $N^+ = \frac{dt}{T_{\text{injection}}}$  particules entrent dans le canal, avec  $T_{\text{injection}} = 1/j_{\text{imposé}}$ , le temps entre deux injections de particules à l'entrée. Durant ce même  $dt$ , il sort,  $N^- = \frac{dt}{T_{\text{éjection}}}$  particules. Par définition,  $T_{\text{éjection}}$  est le temps entre 2 particules qui sortent, soit  $T_{\text{éjection}} = 1/j(x = L)$ . Si on considère une répartition homogène des particules dans le canal central,  $j(x = L) = \rho \times v(\rho)$ . Ce qui conduit à la relation de conservation :

$$dN = (N^+ - N^-) = (j_{\text{imposé}} - \rho \times v(\rho)) dt \quad (6.10)$$

Dans la suite,  $j_{\text{imposé}} = j$ . Soit d'après l'équation 6.9 :

$$\frac{d\rho}{dt} = j - \frac{\rho}{R_0/\delta R + \rho} \times j^* \quad (6.11)$$

Cette équation différentielle va dicter le remplissage du canal central. Elle suppose que la vitesse est constante sur toute la ligne centrale, et donc que la densité est homogène à tout instant, ce qui est inexact principalement lors du début de remplissage du canal.

Pour les grandes densités,  $\frac{j^* \times \rho}{R_0/\delta R + \rho} \sim j^*$ . L'équation 6.11 se résout alors simplement et on obtient alors une relation pour la valeur du temps transitoire,  $T_{\text{trans}}$ , pour atteindre l'état stationnaire :

$$T_{\text{trans}} \propto \frac{1}{j^* - j} \quad (6.12)$$

Un calcul différent a été développé par par Cybulski *et al* [42] pour étudier le remplissage d'un tube par des gouttes de même diamètre que celui du tube. Dans cet article, les auteurs ont écrit une équation différentielle à délai, avec un délai variable, qui est une autre manière de décrire ce système. Sa résolution aboutit à une formule pour la valeur de temps de transitoire,  $T_{\text{trans}}$ , qui est similaire à l'équation 6.12.

Ce temps de transitoire a été obtenu numériquement via le code présenté pour un réseau de dimension  $3 \times 36$ ,  $\Delta P = 1$ ,  $R_0 = 1$  et  $\delta R = 5$ . Dans ces expériences numériques, on impose le courant  $j$  en particules injectées sur le premier lien central du réseau et on mesure le nombre de particules présentes dans le réseau au cours du temps. A chaque courant  $j < j^*$ , il existe une densité stationnaire. On définit alors le temps du transitoire



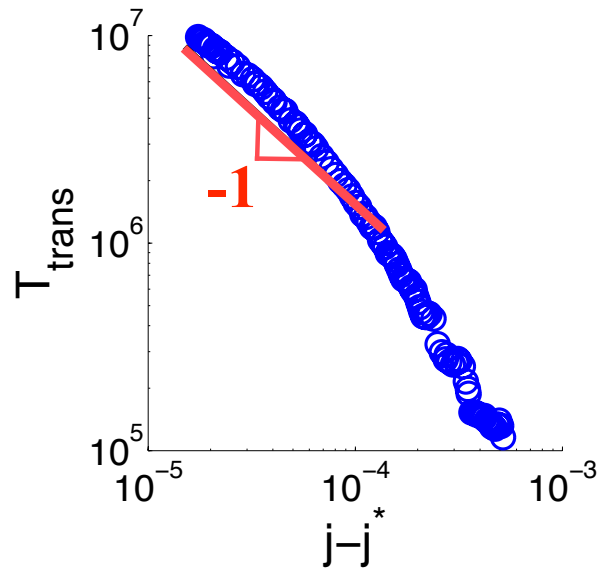


FIGURE 6.13: Temps nécessaire pour atteindre l'état stationnaire ( $T_{\text{trans}}$ ) en fonction de l'écart au courant critique,  $(j^* - j)$ .

comme le temps nécessaire pour passer de la moitié de cette densité stationnaire à 95 % de cette densité stationnaire.

$$T_{\text{trans}} = T(\rho = 0.95\rho_{\text{stat}}) - T(\rho = 0.5\rho_{\text{stat}}) \quad (6.13)$$

On a représenté cette valeur en fonction de l'écart au courant  $j^*$  sur la figure 6.13. On obtient comme attendu une décroissance en puissance  $-1$  et  $j^* = 6,37 \cdot 10^{-3}$ . Cela se vérifie proche de  $j^*$ , lorsque la densité est élevée. Cette dynamique de remplissage de la ligne centrale du réseau est plus rapide pour des courant plus faibles.

Il est à noter que  $j^*$  est un paramètre d'ajustement dans cette formule. Mais on peut retrouver la valeur de ce courant critique en s'intéressant aux profils de densité dans le régime transitoire. La figure 6.14 représente les profils de densité le long du canal central pour différents temps (le temps est codé avec la couleur du profil). Pour des courant inférieurs à  $j^*$ , les profils de densité tendent à s'homogénéiser au cours du temps jusqu'à atteindre une valeur stationnaire. La différence entre la densité au début du réseau et à la fin du réseau diminue et tend vers 0 au cours du temps. Or cela n'est plus le cas, lorsque le courant imposé est supérieur à  $j^*$ . Il se forme un excès de densité, c'est-à-dire un bouchon, à l'entrée du réseau. La différence entre la densité au début du réseau et à la fin du réseau augmente au cours du temps et tend vers l'infini. Plus le courant est fort, plus cette augmentation est rapide.

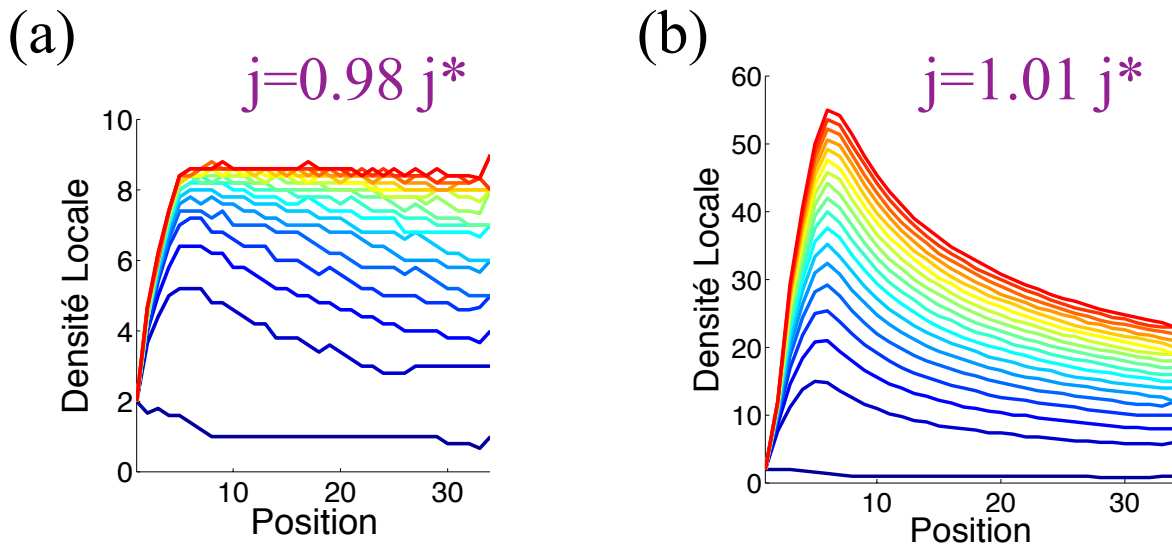


FIGURE 6.14: Profils de densité pour différents temps. a)  $j = 0.98 \times j^*$ . Profil de densité locale (nombre de particules par canal) en fonction du temps. Chaque courbe est séparée d'un écart de temps constant égal à  $\Delta t = 120.10^3$ . b)  $j = 1.01 \times j^*$ . Profils de densité en fonction du temps. Chaque courbe est séparée d'un écart de temps constant égal à  $\Delta t = 550.10^3$ .

Cela est ce qui se passe expérimentalement dans nos expériences de gouttes dans des réseaux d'obstacles décrites dans le chapitre 4. Lorsque le courant est supérieur à  $j^*$ , il se forme un bouchon, puis par collision, les particules envahissent la totalité du réseau. On voit à partir de là qu'il manque un ingrédient pour que l'on puisse envahir le réseau avec ce code numérique. En effet, notre critère de changement de lien compare les deux vitesses transverses. Or lorsque les particules sont toutes situées dans les liens centraux, cette différence est nulle. Il faut donc rajouter un critère de valeur maximale de goutte par lien (appelée valeur stérique maximale dans la suite) pour permettre cette invasion de l'ensemble du réseau. La partie suivante est consacrée à l'étude de ces réseaux envahis. Deux valeurs stériques maximales vont être testées.

## 6.4 Dynamique intermittente des réseaux envahis

Nous étudions le même réseau que pour l'étude du remplissage. Les paramètres du système sont :

- Taille du réseau :  $3 \times 36$ .
- Variation de pression :  $\Delta P = 1$ . Plus précisément, les 3 pressions des noeuds à gauche

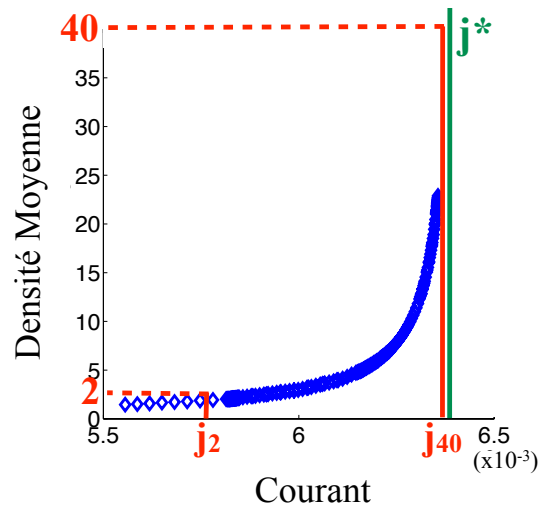


FIGURE 6.15: Densité en fonction du courant en particule.  $j_2$  (resp.  $j_{40}$ ) correspond au courant d'invasion du réseau si la valeur stérique maximale est 2 (resp. 40).

du réseau sont fixés à 1 et les 3 pressions des noeuds à droite sont fixés à 0.

- Résistance d'un lien :  $R_0 = 1$ .
- Résistance induite par la présence d'une particule :  $\delta R = 5$ .
- Les particules sont injectées tous les  $1/j$  pas de temps dans le premier lien central du réseau.

Nous avons vu qu'il existait des solutions stationnaires pour le remplissage du réseau uniquement pour des valeurs de courant inférieures à  $j^*$ . Nous avons décidé d'étudier deux situations d'invasion différentes en lien avec cette transition à  $j^*$ .

Nous allons dans un premier temps fixé la valeur stérique maximale à 40 dans le but de simuler une invasion pour des courants supérieurs à  $j^*$ . En effet, nous devons faire cette approximation car  $\rho(j^*) = \infty$ . Dans ce régime, le courant minimal pour lequel se déclenche l'invasion ( $j_{40}$ ) est proche de  $j^*$ , comme on le voit sur la relation entre le courant et la densité en particule du système étudié, reproduit sur la figure 6.15. Nous étudierons donc une invasion pour des courants supérieurs à  $j^*$ . Nous nous focaliserons ensuite sur le cas où cette valeur stérique maximale est égale à 2. L'invasion du réseau peut se faire dans ce cas pour des courants inférieurs à  $j^*$ .

Ces deux situations représentent en réalité deux cas physiques différents. L'invasion du réseau à  $j > j^*$  est exactement notre cas expérimental pour les gouttes dans le réseau d'obstacles. Le cas où l'invasion s'effectue à  $j < j^*$  représente les systèmes expérimentaux pour lesquels la densité du courant maximum est supérieure à 1. Dans ces situations, l'envahissement se produit sans qu'il y ait eu formation de bouchons. Cela est le cas pour les particules photoréticulées, (brièvement décrites dans le chapitre 4 et voir chapitre 7) où les

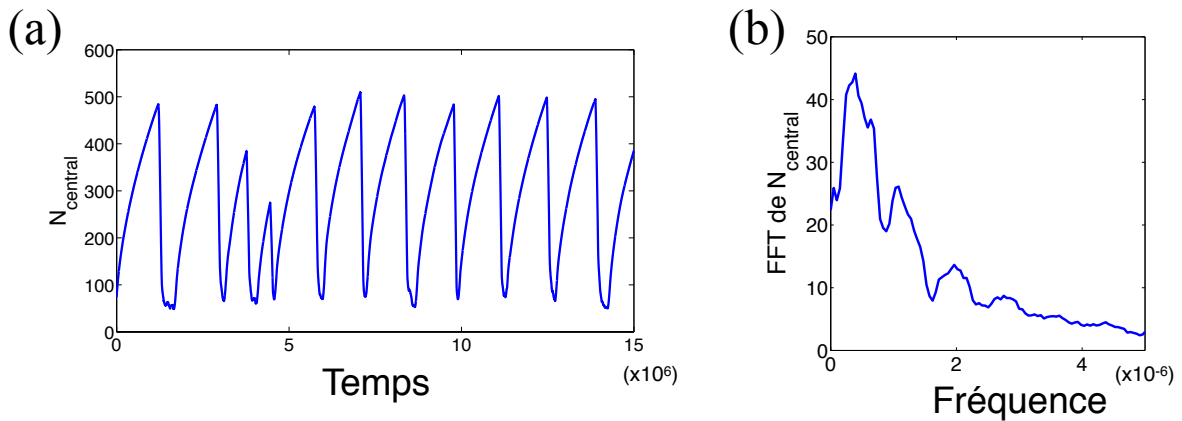


FIGURE 6.16: a) Nombre de particules dans le canal central en fonction du temps pour  $j = 6.44 * 10^{-3} = 1.01 \times j^*$ . d) Transformé du Fourier du même signal.

collisions qui induisent une invasion du réseau se produisent avant ce courant maximal. Nous commençons par étudier le cas où la valeur stérique maximale est de 40 particules par lien.

#### 6.4.1 Valeur stérique maximale égale à 40. Envahissement à $j > j^*$

La première question à laquelle nous souhaitons répondre est : notre système numérique reproduit-il la dynamique intermittente observée expérimentalement. L'étude du nombre de particules présentes dans les liens centraux au cours du temps, reproduite sur la figure 6.16a, nous permet de répondre positivement à cette question. Plusieurs observations sont à faire à ce stade. Le système reproduit une dynamique intermittente avec deux temps caractéristiques, un temps long de chargement et un temps court de décharge. De fortes chutes dans le nombre de gouttes dans le canal central sont visibles et synonymes d'effets coopératifs. Au delà d'un certain courant, la variance du signal reste élevée mais il n'y a plus de signe clair d'intermittence, comme dans le cas expérimental.

Le temps de chargement est parfaitement capté par une étude de Fourier du signal. La transformée de Fourier est reproduit sur la figure 6.16b (le signal a été filtré basse-bas pour enlever du bruit numérique). Le temps de décharge est court par rapport au temps de chargement mais est long par rapport au temps de traversée d'une particule à travers le canal. Nous nous concentrons dans la suite sur le temps de chargement de ces avalanches, car il dicte la dynamique du système sur des durées très importantes.

Pour comprendre cette dynamique, différentes expériences numériques sont effectuées, toutes pour des courants supérieurs à  $j^*$ . On reporte alors le temps caractéristique obtenu

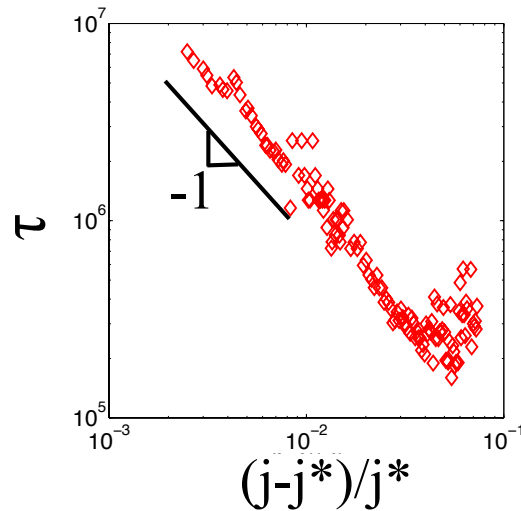


FIGURE 6.17: Temps caractéristique,  $\tau$ , (obtenu à partir des transformées de Fourier des signaux temporels) en fonction de la distance au courant critique  $(j - j^*)/j^*$ .

à partir des transformées de Fourier en fonction de l'écart au courant critique  $j^*$ . Les points correspondant aux temps caractéristiques les plus élevés n'ont pu être obtenus par analyse de Fourier car ces temps sont dans ces cas plus grands que la moitié de la durée du signal total. Mais une analyse simple du signal permet de les obtenir.

On remarque tout d'abord que ce temps caractéristique augmente fortement proche de  $j^*$ , selon une puissance  $-1$ ,  $\tau \propto (j - j^*)^{-1}$ . Ce temps atteint des valeurs arbitrairement grandes. Pour les courants élevés, la dispersion dans la détermination du temps caractéristique, nous révèle qu'on ne peut plus clairement définir un temps caractéristique. La dynamique tend à ne plus être intermittente. Ce phénomène aux courants élevés a été observé dans nos expériences de gouttes sur réseau présentées au début du chapitre.

Pour quantitativement comprendre cette phénoménologie, nous allons nous servir de l'étude sur le remplissage du réseau effectuée dans la partie précédente. On reporte sur la figure 6.18a, ce temps caractéristique  $\tau$  (losanges rouges), mais aussi un temps  $\tau_1$  (points bleus), défini à partir de cette étude sur le remplissage, en fonction de l'écart à  $j^*$ .  $\tau_1$  est le temps nécessaire, à un courant donné, pour qu'à partir d'un réseau initialement vide, la densité atteigne en un point la valeur 41, c'est à dire supérieure à notre condition stérique maximale (points bleus sur la figure 6.18a). C'est ainsi par définition le temps nécessaire pour déclencher la première avalanche si le réseau initial est vide. Ces deux courbes se regroupent parfaitement proche de  $j^*$ . Cela montre que ce temps de chargement est bien égal au temps nécessaire pour passer d'un état vide à un point où  $\rho_{\text{local}} = 41$ . Le temps caractéristique de ces avalanches est exactement le temps de première avalanche.

De plus, on reporte sur la figure 6.18b l'amplitude moyenne des avalanches (losanges

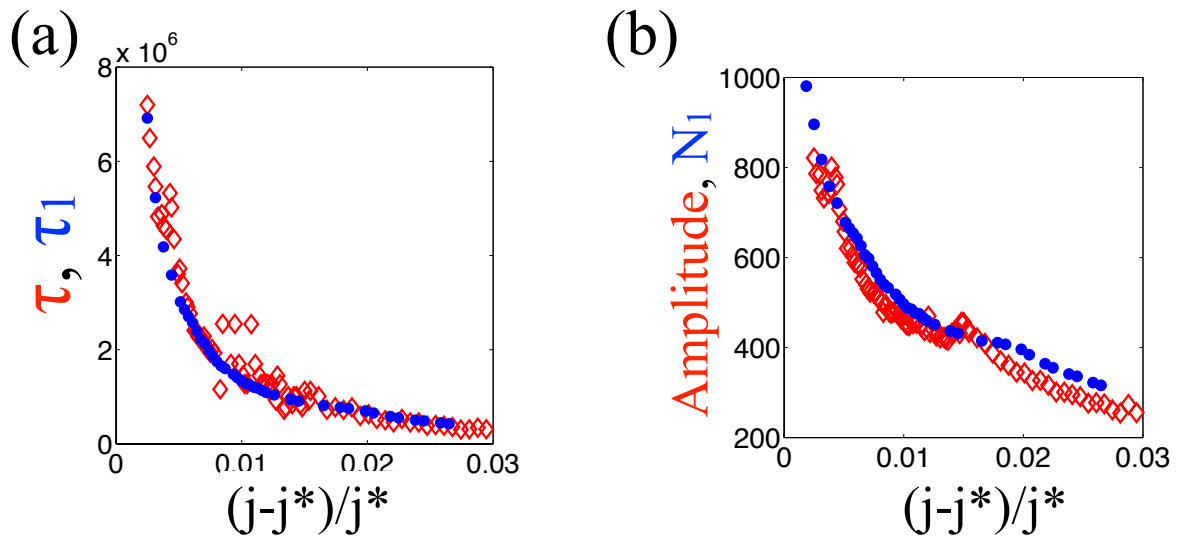


FIGURE 6.18: a) Temps caractéristique des avalanches (losanges rouges) et temps nécessaire à la première avalanche si le réseau initial est vide (points bleus) en fonction du courant. b) Amplitude des avalanches dans la ligne centrale (losanges rouges) et nombre de particules  $N_1$  présentes dans le réseau au départ de la première avalanche en fonction du courant.

rouges) et des valeurs,  $N_1$ , pour l'état transitoire (points bleus). Ces points bleus représentent le nombre de particules présentes sur la ligne centrale lorsqu'on atteint en un lien du réseau une densité de 41. Cela montre que la vidange du réseau implique la quasi totalité des particules présentes. L'amplitude des avalanches est donc le nombre de particules présentes dans le canal avant le déclenchement de l'avalanche.

Dans ce régime, la dynamique d'avalanche est ainsi caractérisée uniquement grâce à l'étude du remplissage du réseau, présentée dans la partie précédente. Le temps de chargement du réseau et l'amplitude des avalanches ont pu être clairement déterminés. La présence d'une seule particule sur un lien non central induit une perturbation suffisamment forte pour créer des effets coopératifs, déclencheurs d'avalanches.

Enfin, il est important de noter que, même dans ces scénarios proches de  $j^*$ , le nombre de gouttes chute au maximum d'une valeur de 800, ce qui correspond à moins de 23 particules par site en moyenne. Or par définition, en un point ce nombre est égal à 40. La répartition des particules n'est donc absolument pas homogène. Cela se voit grâce au profils de la figure 6.14. Une bouchon se forme à l'entrée et c'est sa dynamique propre qui dicte le début de l'avalanche et aussi son amplitude. Or, nous avons vu que ce profil de densité est homogène lorsque le courant imposé est inférieur à  $j^*$ . On peut alors raisonnablement penser que la dynamique d'avalanche soit différente, dans le cas où l'invasion se produit

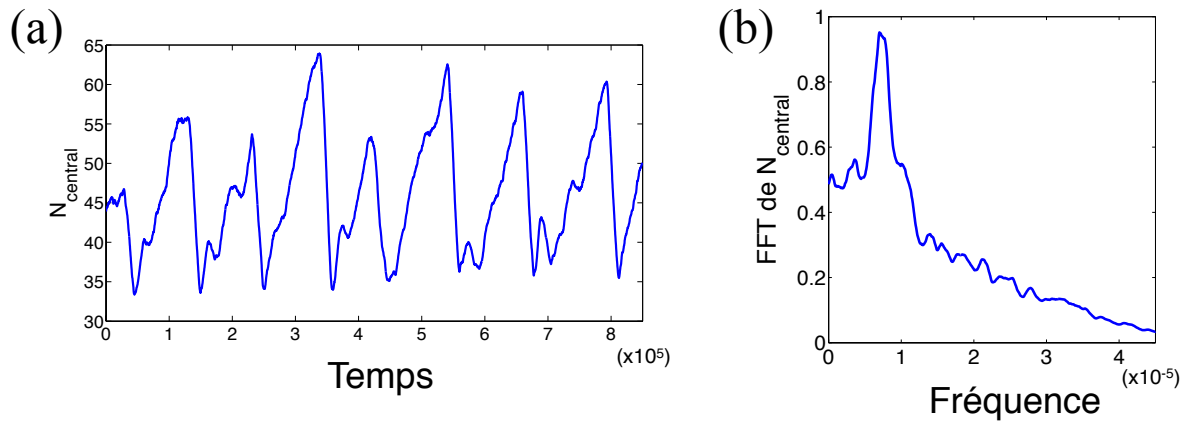


FIGURE 6.19: a) Nombre de particules dans le canal central en fonction du temps pour  $j = 5.89 * 10^{-3} = 0.93 \times j^*$ . d) Transformé du Fourier du signal à  $j = 5.89 * 10^{-3}$ .

pour des courants inférieur à  $j^*$ . Nous allons maintenant étudier un tel cas.

#### 6.4.2 Valeur stérique maximale égale à 2. Envahissement à $j < j^*$

Dans cette partie, nous imposons la valeur stérique maximale à 2. Nous allons donc pouvoir envahir le réseau pour des courants inférieurs à  $j^*$ . La figure 6.19 nous montre que la dynamique est toujours intermittente dans ce régime. L'échelle de temps est ici beaucoup plus petite mais on va de nouveau pouvoir définir un temps caractéristique à partir des transformées de Fourier des signaux temporels (voir figure 6.19b). L'amplitude relative du pic caractéristique dans la transformée de Fourier est beaucoup plus faible dans ce régime. Cela signifie que la dynamique du système est plus aléatoire.

Si on suppose que le scénario est similaire au cas précédent, le temps de charge de notre système doit nécessairement être borné par le temps nécessaire, pour le courant  $j_2$  (courant ayant comme valeur stationnaire une densité de 2), à atteindre la valeur 3 en un point. Ce temps a une valeur faible et finie. Une borne similaire existait dans le cas précédent, mais comme  $j_{40} \sim j^*$ , cette valeur était particulièrement grande car  $T_{\text{stat}} \propto (j^* - j)^{-1}$ .

On reporte sur la figure 6.20 les temps caractéristiques et les amplitudes des avalanches pour les différentes simulations (losanges rouges). On trace sur ces courbes, comme pour le critère d'invasion précédent, les valeurs obtenues à partir du remplissage du réseau. Ainsi, les points bleus représentent sur la figure 6.20a le temps de déclenchement de la première avalanche si le réseau est vide ; tandis qu'ils représentent sur la sur la figure 6.20b le nombre  $N_1$  de particules présentes dans le réseau au moment du déclenchement de cette première avalanche. Tous ces points ne se regroupent pas sur une même courbe, la dynamique de ces avalanches est donc différente du cas précédent.

Une autre différence notable existe entre les deux régimes ; elle se situe au niveau du

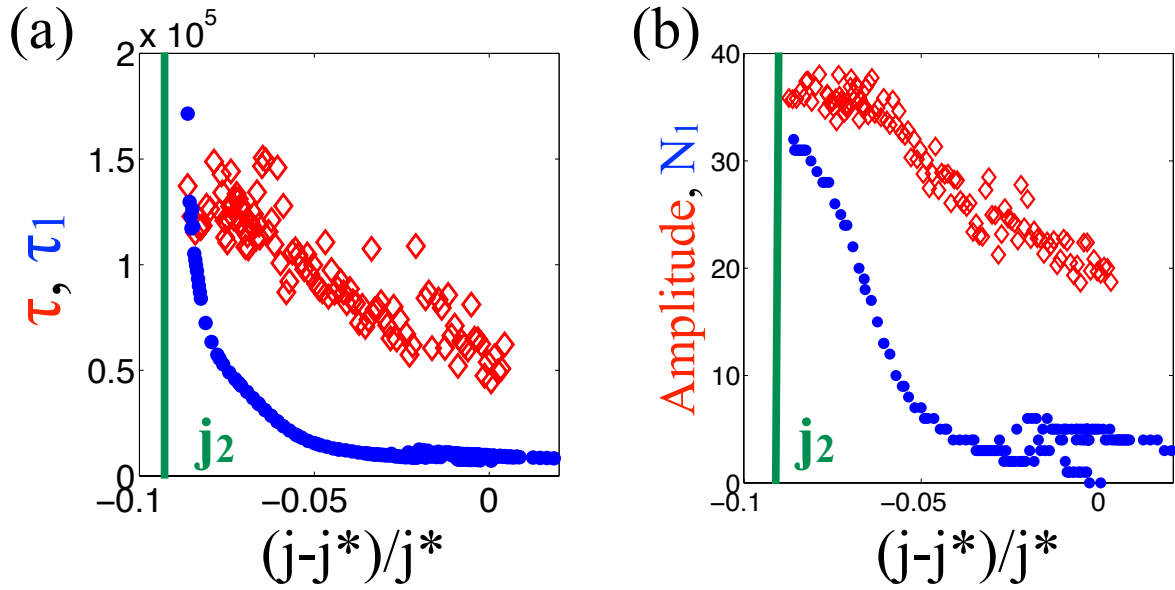


FIGURE 6.20: a) Temps caractéristique des avalanches (losanges rouges) et temps nécessaire à la première avalanche si le réseau initial est vide (points bleus) en fonction du courant. b) Amplitude des avalanches dans la ligne centrale (losanges rouges) et nombre de particules  $N_1$  présentes dans le réseau au départ de la première avalanche en fonction du courant.

comportement du taux d'occupation du réseau hors des liens centraux. Deux signaux, correspondant aux deux régimes précédents, sont reproduits sur la figure 6.21. Dans le cas où la valeur maximale est de 40 (figure 6.21a), le réseau est vide en dehors du canal latéral entre deux avalanches. Cela n'est absolument plus le cas dans ce deuxième régime (figure 6.21b). Des particules sont continuellement présentes hors du canal central. Plus précisément, ces particules sont uniquement présentes dans les canaux transverses proches de la ligne centrale (le nombre de particules présentes dans les liens longitudinaux non centraux ( $N_{\parallel}$ ) étant nul la plupart du temps (ligne verte de la figure 6.21b)). Par contre, le déclenchement de l'avalanche a lieu lorsqu'une particule parvient à s'écouler longitudinalement en dehors des liens centraux ce qui est similaire au cas précédent.

Ainsi, la dynamique qui régit les avalanches dans ce régime est entièrement dictée par le remplissage des liens transverses. Lorsque le courant est élevé, on atteint rapidement la valeur stérique maximale et on éjecte dans un lien transverse une particule. Le temps caractéristique de l'avalanche est le temps nécessaire pour une particule placée dans un lien transverse pour atteindre un lien latéral longitudinal, soit  $\tau_{\text{traversée}} = 6.10^4$ . Lorsque le courant en particule est plus faible, la densité est proche de 2 sur tous les liens centraux du réseau. Les canaux transverses vont tous se remplir de particules avant qu'une



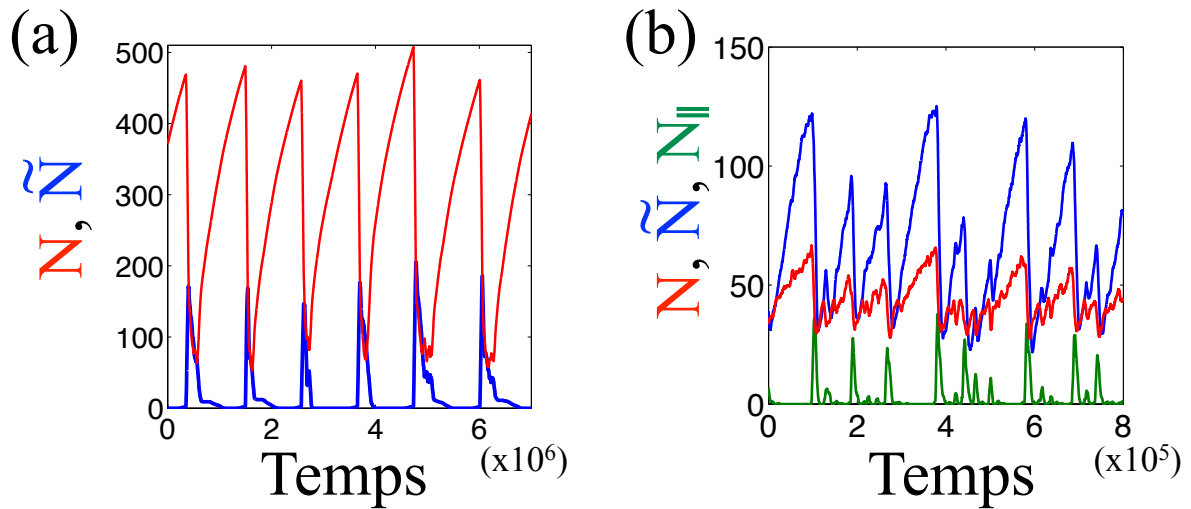


FIGURE 6.21: Nombre de particules en fonction du temps. En rouge : nombre de particules dans la canal central ( $N$ ). En bleu : nombre de particules dans le réseau hors du canal central ( $\tilde{N}$ ). En vert : nombre de particules dans les liens longitudinaux non centraux du réseau ( $N_{||}$ ). a) Valeur d'occupation maximale=40.  $j = 1.01 \times j^*$ . b) Valeur d'occupation maximale=2.  $j = 0.94 \times j^*$ .

particule n'atteint un lien longitudinal non central. Le temps de séjour d'une particule dans un canal transverse peut être arbitrairement grand et est difficile à exprimer. En effet, si la densité dans la ligne centrale n'est pas homogène, la vitesse dans ces canaux transverses peut être positive ou négative. Le temps de l'avalanche correspond donc au temps de stockage des particules dans les liens transverses. Par exemple, pour un courant  $j$  proche de  $j^*$ , plus de 100 particules sont stockées dans ces liens transverses avant le déclenchement d'une avalanche, soit 1,5 particules en moyenne par lien. Cela aboutit à un temps plus long avant ce déclenchement. Cela est l'explication qualitative de cette croissance du temps de chargement lorsque qu'on diminue le courant. Pour être plus quantitatif, il faut étudier plus en détail cette dynamique où les vitesses dans les liens latéraux changent de signe. Ce travail est en cours.

A travers ce code, nous avons réussi à comprendre la dynamique intermittente observée expérimentalement. Deux scénarios différents d'invasion du réseau ont été présentés et sont résumés sur la figure 6.22. On a montré une différence qualitative primordiale entre ces régimes, résidant dans la proximité à  $j^*$ . Dans le cas où l'invasion se fait pour des courants en dessous et éloigné de  $j^*$ , on a vu que cette invasion est dictée par les paramètres micro-

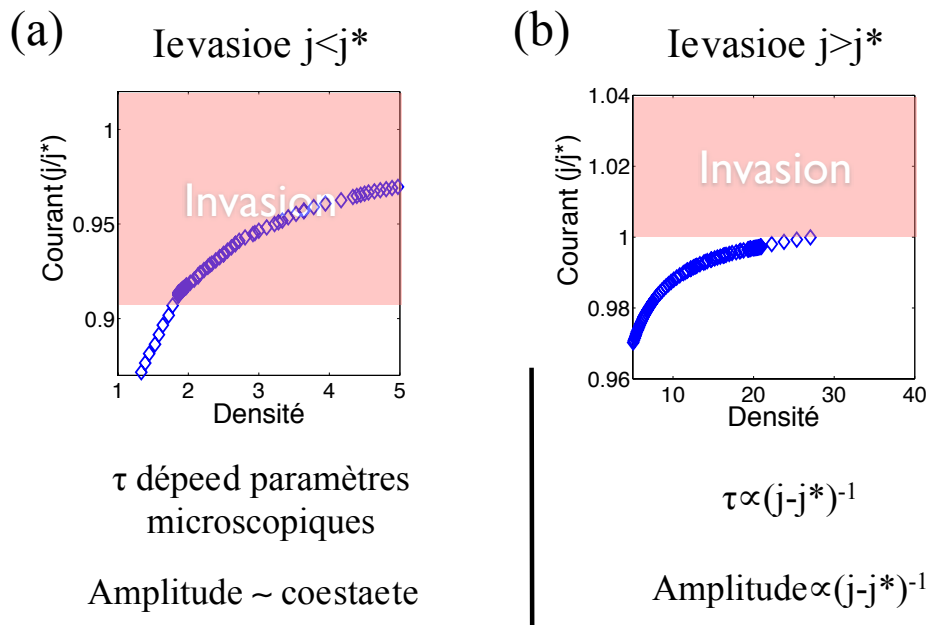


FIGURE 6.22: Caractéristiques principales des deux scénarios d'invasion. Courant en particules en fonction de la densité. La zone rouge représente les courants pour lesquels il y a invasion du réseau. a) Invasion à  $j > j^*$ . b) Invasion à  $j < j^*$ .

scopiques du système (vitesse dans les liens transverses du réseau principalement). Tandis que le cas où l'invasion a lieu à  $j^*$ , les échelles de temps sont beaucoup plus grandes et les paramètres microscopiques du système n'influent plus sur la dynamique. Le temps caractéristique ne dépend alors que de l'écart à  $j^*$ , ce qui est propre aux phénomènes critiques.

D'autre part, les temps de calcul de notre modèle numérique étant raisonnables, il semble donc efficace pour étudier la dynamique de particules sur réseau en milieu confiné. Plus précisément, il décrit parfaitement le transport de particules dans un réseau de tubes. Ceci est légèrement différent d'un réseau d'obstacles pour lequel on doit prendre en compte le passage dans les noeuds pour décrire ce type de système. Au niveau de ce code, ce temps est nul ; les particules circulent uniquement dans les liens du réseau. Pour une meilleure prise en compte du passage des particules au niveau des noeuds du réseau, on pourrait modéliser la présence d'une particule dans le réseau par une modification des résistances longitudinales et transverses du noeud le plus proche. Mais cette simulation donne des résultats probants, en lien avec les expériences. On peut même envisager une étude encore plus approfondie des caractéristiques propres de ce système numérique.

## Écoulement de cristaux 2D de particules

En guise de conclusion à ce manuscrit, je tiens à décrire une expérience sur l'écoulement d'objets solides que nous avons initiée les dernières semaines précédant la rédaction. Ce travail en cours retranscrit principalement des résultats qualitatifs. Une partie des expériences a été réalisée par Nicolas Desreumaux, étudiant de master 2, qui commencera sa thèse au PMMH en octobre 2011.

### 7.1 Positionnement du problème

La dynamique 1D de particules en interaction a été étudiée de manière quantitative et sous de nombreux aspects (stationnaire et dynamique) à travers une étude expérimentale et théorique dans les précédents chapitres. Il a aussi été montré la dynamique d'un ensemble 2D de particules dans un réseau d'obstacles peut être intermittente sous certaines conditions. Ce cas précis que nous avons expérimentalement et numériquement traité provient en partie de la géométrie spécifique que nous avons utilisée. Les avalanches se produisent à des temps caractéristiques précis grâce notamment aux obstacles qui empêchent les fluctuations transverses lors de l'écoulement longitudinal des particules. Cela nous a permis d'avancer dans notre compréhension de systèmes de particules en interaction.

*In fine*, le point important est le fait que l'écoulement soit potentiel. Nous avons donc supprimé les obstacles de nos canaux microfluidiques et étudié le transport d'un ensemble de particules dans une cellule de Hele-Shaw, comme cela est représenté sur la figure 7.1. Une telle expérience, que nous avons reproduite, a été réalisée par l'équipe de Roy Bar-Ziv en 2010 [19]. Ils ont étudié le transport d'une suspension dans ce type de canal. En moyennant

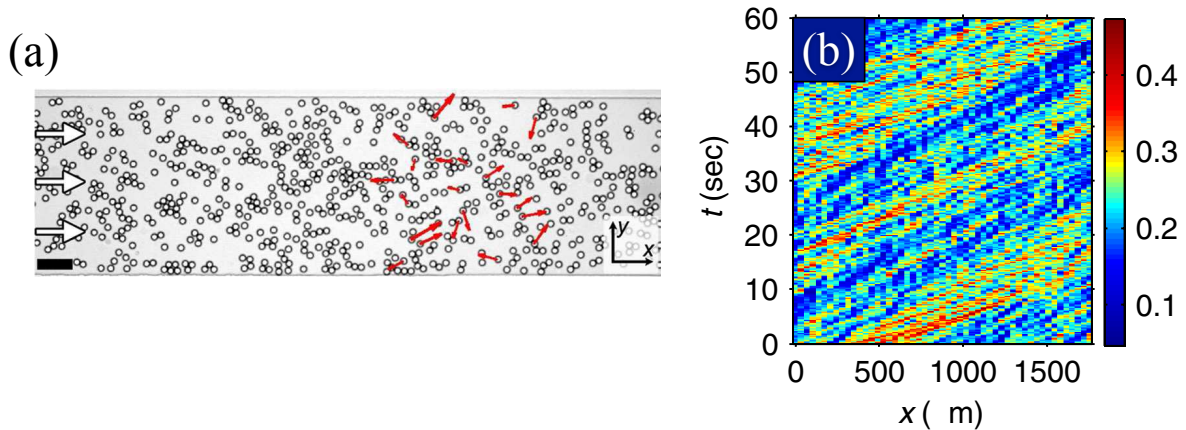


FIGURE 7.1: Figures extraites de [19]. a) Vue expérimentale d'un ensemble 2D de gouttes d'eau s'écoulant dans de l'huile dans une cellule de Hele-Shaw. La barre noire représente  $100 \mu\text{m}$ . b) Diagramme spatio-temporel de l'expérience précédente, moyennée selon la direction ( $0y$ ). L'échelle de couleur à droite indique les valeurs de la densité.

la densité des particules selon un axe perpendiculairement à la direction d'écoulement, les auteurs ont mis en avant expérimentalement la présence d'ondes de densité se déplaçant plus rapidement que la vitesse moyenne des particules, comme cela se voit sur le diagramme spatio-temporel de la figure 7.1b. Ils ont analysé leurs résultats **empiriquement** selon une équation dynamique de Burgers, mais avec un coefficient positif, signifiant qu'une vitesse rapide est associée aux zones denses. Cela n'est pas en contradiction avec nos résultats précédents, car ils étudient une dynamique 2D, mais ce résultat nous interpelle.

Nous cherchons à avoir une compréhension approfondie de cet ensemble de particules. Mais, le nombre important de particules en jeu dans cette expérience et la complexité associée nous a conduit à étudier un autre type de système. Notre démarche a été de chercher à regarder comment s'écoule un ensemble fini de particules dont on connaît parfaitement les positions initiales.

## 7.2 La technique de Flow Lithography

Avec les techniques courantes de gouttes en microfluidique, on peut difficilement choisir les positions initiales des particules. Nous avons alors pris le parti d'utiliser la technique de "Flow Lithography" qui a été décrite dans le chapitre 3. Elle permet de fabriquer des

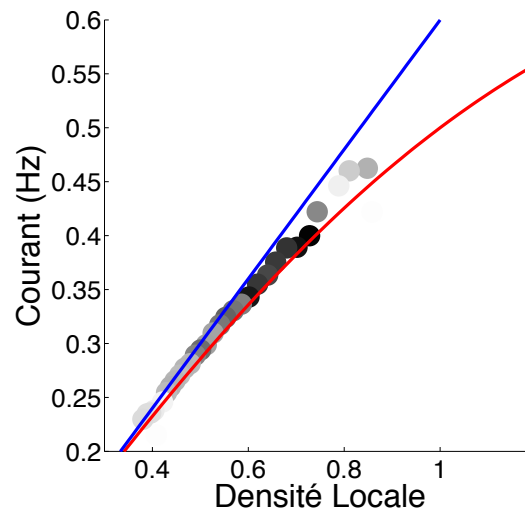


FIGURE 7.2: Courant en fonction de la densité. Trait bleu : approximation linéaire. Trait rouge : approximation dipolaire. Voir chapitre 4 pour voir les détails de l'expérience et la figure 4.15 en particulier.

particules polymères solides *in situ*. La forme et la position des particules peuvent aisément être choisies en dessinant un masque qui reproduit l'expérience que l'on souhaite réaliser. Nous allons pouvoir grâce à cette technique facilement étudier l'écoulement de plusieurs dizaines de particules positionnées de manière précise dans un canal microfluidique. Nous nous sommes focalisés sur l'écoulement de cristaux 2D de maille définie. La première question à laquelle on désire répondre est : un cristal 2D peut-il se déplacer sans que les distances entre particules soient modifiées ? Si ce n'est pas le cas, comment peut-on caractériser la déstabilisation de ce cristal de particules ?

Mais avant de pouvoir sonder ces caractéristiques 2D de cet ensemble d'objets solides, il est nécessaire de vérifier que la dynamique de ces particules est similaire à celles de gouttes en interaction. Il n'y a aucune différence *a priori*, mais il convient de sonder l'amplitude des interactions entre ces particules. Ce point précis a été discuté dans le chapitre 4. On a montré dans ce chapitre que ces particules agissent de manière similaire, comme le rappelle la figure 7.2. Cette courbe nous montre que ces particules perturbent bien l'écoulement de manière dipolaire, mais l'amplitude de cette perturbation est plus faible. Cela s'explique par l'épaisseur relativement importante (de l'ordre du micron) du film de liquide entre les parois du canal et les particules.

Ainsi, l'écoulement de particules solides est qualitativement similaire aux écoulements décrits dans les chapitres précédents. Nous allons maintenant utiliser les spécificités de la

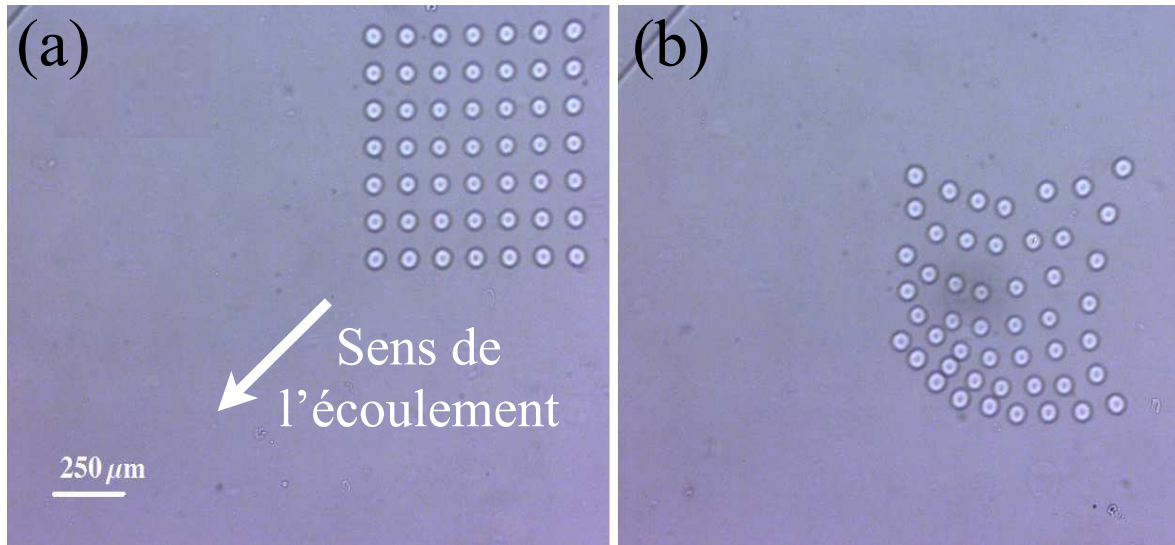


FIGURE 7.3: Ecoulement d'un cristallite 2D de particules circulaires de diamètre  $50 \mu\text{m}$ .  $v_{\text{fluide}}(t < 0\text{s}) = 0$ . a)  $t = 0\text{s}$ . On impose un écoulement, tel que  $v_{\text{fluide}}(t > 0\text{s}) = \text{constante}$ , selon la flèche blanche. b)  $t = 48\text{s}$ .

technique "Flow Lithography" pour sonder des propriétés inaccessibles par des techniques classiques de gouttes en microfluidique.

## 7.3 Ecoulement d'un cristallite carré

### 7.3.1 Expérience

Il est techniquement complexe d'obtenir un cristal étendu de particules, nous nous sommes donc concentrés sur l'étude d'un cristallite.

L'expérience consiste à fabriquer des particules solides *in situ* de forme circulaire selon un maille carré définie (voir la photo 7.3a) puis de les faire circuler dans un écoulement contrôlé. Nous utilisons un canal microfluidique de dimension  $500 \mu\text{m}$ , de longueur  $2 \text{ mm}$  et de hauteur  $40 \mu\text{m}$ . Les particules sont fabriquées grâce à un montage réalisé au niveau du diaphragme de champ du microscope (voir chapitre 3 pour plus de détails). Elles ont un diamètre de  $50 \mu\text{m}$  et sont distantes, centre à centre, de  $100 \mu\text{m}$ . L'écoulement considéré est potentiel et le nombre de Reynolds ( $< 10^{-3}$ ) de l'expérience nous indique que l'écoulement est décrit par l'équation de Stokes.

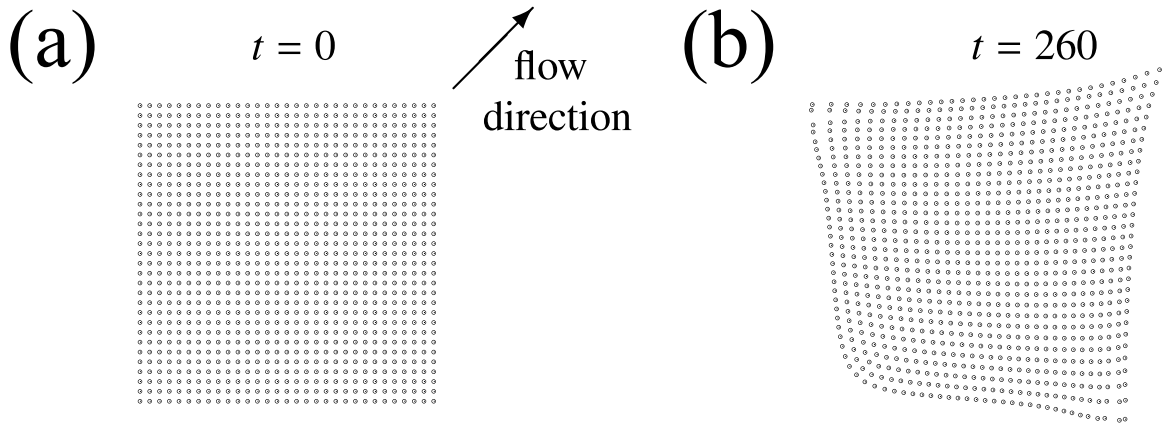


FIGURE 7.4: Figure extraite de [101]. Evolution d'un carré de taille  $N=961$  de particules de diamètre  $d$ , dans un écoulement de poiseuille dans canal de dimension  $H/d = 1,1$ . Les particules sont espacées initialement d'une distance  $L/d = 5$ . Le temps est normalisé par la vitesse d'une particule isolée. a)  $t = 0$  s. b)  $t = 260$  s.

L'axe du cristallite est incliné d'un angle de  $45^\circ$  par rapport à la direction d'écoulement. Le cliché de la figure 7.3b montre comment 48 secondes d'écoulement ont perturbé ce cristallite ordonné de particules. Plusieurs observations sont à faire à ce stade. Premièrement, cette expérience montre qu'un cristallite 2D de particules, dans cette configuration, est instable sous écoulement. L'écoulement étant de Stokes, ce sont les interactions entre particules qui sont responsables de cette déstabilisation. De plus, le front avant et le front arrière n'évoluent pas de la même manière. Ce comportement ne peut être décrit par une réponse linéaire aux fluctuations locales de densité, cet empilement d'objets solides sous écoulement est donc régi par une dynamique non-linéaire. Plus précisément, on note que la courbure du front avant augmente avec le temps tandis que la courbure du front arrière diminue. Le front avant semble diffuser dans une direction perpendiculaire à l'écoulement, à l'opposé de l'évolution du front arrière.

Il reste à comprendre ce que signifie cette évolution. Nous avons cherché à rationaliser ce comportement, ce qui est un travail en cours. Je vais présenter les premiers résultats.

### 7.3.2 Modélisation

Il convient tout d'abord de relater ici le travail effectué par l'équipe de Blawdziewicz ([100] et [101]). Ils ont étudié numériquement l'écoulement d'un carré de 1000 particules, comme représenté sur la figure 7.4. Les auteurs considèrent un écoulement de Stokes dans une cellule de Hele-Shaw. Les particules sont confinées tel que  $H/d = 1,1$ , avec  $H$  la hau-

teur du canal et  $d$  le diamètre des particules. Cette simulation repose sur un calcul à chaque de temps du potentiel des vitesses en considérant la présence de ces particules. Il suppose également que les perturbations sont uniquement de champ proche ; ils annulent les contributions de champ lointain. Ce calcul numérique est particulièrement complexe car trouver la forme de ce potentiel de vitesse avec  $10^3$  particules est long et difficile.

Finalement, leurs résultats descriptifs semblent corroborer nos observations expérimentales, comme on le voit sur la figure 7.4. Il y a une déstabilisation à l'avant et à l'arrière de ce carré de particules ; la déstabilisation sous écoulement ayant qualitativement la même forme que nos expériences microfluidiques. Cela confirme expérimentalement la représentation numérique de ce problème avec leur code.

Mais nous cherchons à obtenir un modèle simple qui nous permettent de comprendre qualitativement la dynamique de ces systèmes. Le calcul exact du potentiel de vitesse de cet ensemble de particules est techniquement trop complexe, il est important de trouver des hypothèses simplificatrices raisonnables à ce problème.

Cela constitue le projet de début de thèse de N. Desreumaux. En considérant une perturbation dipolaire de chaque particules au champ de vitesse total, E. Lauga et D. Bartolo ont décrit l'évolution d'un front (perpendiculaire à la direction de l'écoulement ( $Ox$ )) d'un ensemble de particules entre 2 régions de densités différentes. Soit la fonction  $h(y, t)$  décrivant la forme de ce front dans le référentiel du front en mouvement ; son évolution s'écrit :

$$\partial_t h = \Lambda \partial_{yy}^2 h \quad (7.1)$$

Avec  $\Lambda$  un coefficient de diffusion qui est positif si la perturbation est positive. Cela est le cas de notre front avant de notre carré expérimental de particules solides. On peut, en effet, considérer les particules constituant le front avant du carré comme une chaîne de particules perturbée telle que  $h(y, t = 0) = f_{\text{triangle}}$ , une fonction triangle. L'évolution de cette fonction triangle est donc diffusive, ce que nous observons expérimentalement.

En ce qui concerne le front arrière, on peut considérer les particules des deux côtés arrières du carré comme une fonction triangle mais avec une perturbation négative,  $h(y, t = 0) = -f_{\text{triangle}} \leq 0$ . Dans cette situation le calcul effectué prédit un coefficient de diffusion négatif,  $\Lambda < 0$  (équivalent à une diffusion classique avec renversement du temps).

Nous observons qualitativement une telle phénoménologie sur nos expériences, rationalisant ainsi nos observations.

Au delà de ce calcul quantitatif pour un front entre deux régions de densité différente, nous pouvons comprendre qualitativement cette phénoménologie en s'intéressant à la symétrie des perturbations dipolaires. La figure 7.5 va nous guider dans cette compréhension. On note tout d'abord, d'après le schéma 7.5a, que des particules contenues dans un même axe perpendiculaire à l'écoulement sont plus rapides qu'une particule isolée. Ensuite, on



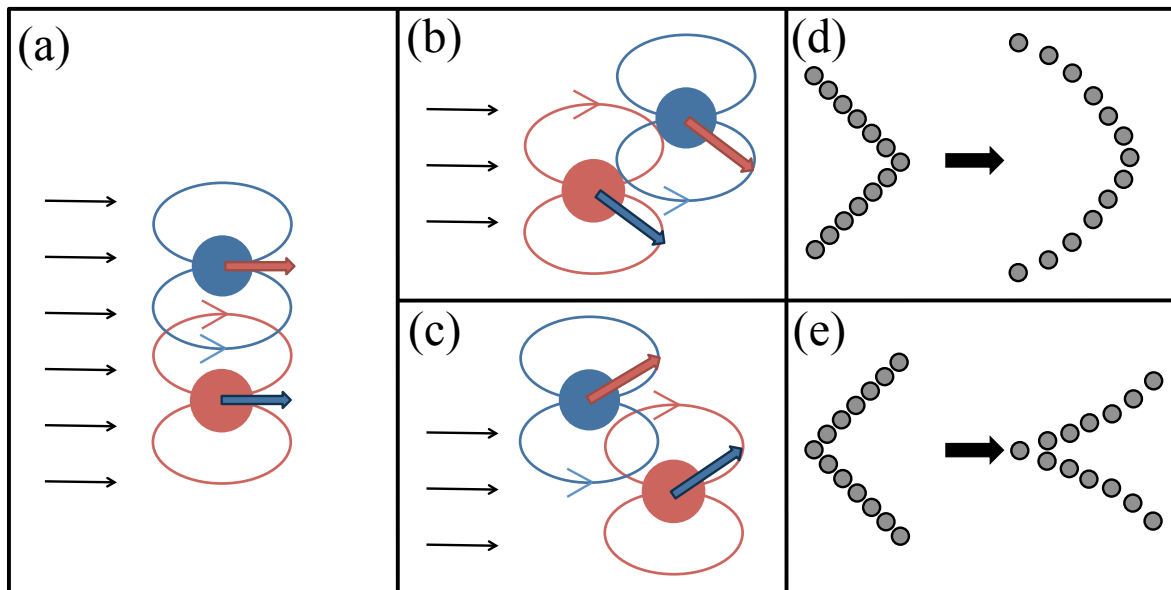


FIGURE 7.5: Interactions entre particules. Les flèches noires indiquent la direction de l'écoulement les flèches colorées indiquent la direction de la perturbation induite par l'autre particule. a) Interactions transverses. Des particules dans le même axe perpendiculaire à l'écoulement sont plus rapides qu'une particule isolée. b) et c) Des particules non contenues dans un plan parallèle ou perpendiculaire à la direction du fluide s'écoulent selon un angle non nul par rapport à cette direction. d) et e) Écoulement qualitatif de chaînes de particules.

voit, à partir des schémas 7.5b et 7.5c, pourquoi des particules non contenues dans un axe perpendiculaire ou parallèle à la direction du fluide s'écoulent selon un angle non nul par rapport à cette direction.

La combinaison de ces deux arguments permet de comprendre la forme sous écoulement des chaînes de particules représentées sur la figure 7.5d et 7.5e. La modification globale de la forme est une conséquence directe du fait que cette chaîne ne soit pas contenue dans un axe perpendiculaire ou parallèle à l'écoulement. Mais cette modification n'est pas un déplacement en bloc. Cela vient du fait que les particules ne sont pas toutes perturbées de la même manière par les autres particules, car les distances interparticules sont modifiées au cours du temps ; toutes les particules ne vont pas avoir la même vitesse. Le cas le plus visible est celui de la particule centrale de la figure 7.5e, qui aura une vitesse plus faible que toutes les autres car sa densité transverse est la plus faible.

Cette approche sur la forme des perturbations dipolaires nous permet de comprendre qualitativement les résultats expérimentaux précédents.

Ce travail se poursuit actuellement au travers d'une étude expérimentale, numérique et

théorique. Une analyse fine des résultats expérimentaux est en cours pour quantitativement interpréter les expériences déjà réalisées. Des structures de cristaux 2D plus complexes vont aussi être étudiées dans le but de toujours mieux comprendre cette dynamique d'objets perturbant l'écoulement de manière dipolaire.

## 7.4 Perspectives

Ce travail a fourni divers résultats sur le transport de particules en milieu confiné. Nous avons réussi à quantitativement décrire le comportement d'un chaîne 1D de particules. Nous avons mis en avant la présence d'un courant maximum et nous avons montré que la dynamique de ce type d'objets est parfaitement décrite par une équation de Burgers. Le transport 2D d'objets dans des réseaux d'obstacles microfluidiques a aussi été étudié expérimentalement et interprété grâce à l'implémentation d'un code numérique simple. Cela nous a amené à étudier l'évolution de cristaux ordonnés 2D de particules dans des écoulements potentiels ; travail toujours en cours.

On peut premièrement trouver un prolongement simple à ce travail issu des opportunités que nous offre la "Flow Lithography". Cette technique permet de fabriquer aisément des particules de forme désirée. Une étude sur cette forme peut aussi être enrichissante. En effet, le transport de particules anisotropes ne peut pas être décrit par une contribution isotrope à la perturbation de l'écoulement. Cela peut aboutir, par exemple, à des rotations des particules sous écoulement ou à rendre instable tout écoulement 1D de ces particules. En définitive, l'influence de l'anisotropie des particules sur l'écoulement n'a pas été traitée dans cette thèse mais s'inscrit pleinement dans la problématique générale de ce travail.

Par ailleurs, un des objectifs de ce travail a été de toujours mettre en lien nos résultats avec d'autres domaines de la physique. Cela nous a permis de comparer, par exemple, nos résultats avec des modèles de physique statistique (TASEP). Une autre piste pourrait s'avérer particulièrement intéressante à explorer.

Notre étude 2D que l'on a présentée dans ce chapitre pourrait être reliée à des travaux sur la sédimentation. Bien que les écoulements rampants et les écoulements potentiels ont des caractéristiques différentes (portée des interactions, forme des écoulements induits...), les deux admettent une répartition spatiale particulière sous écoulement à deux dimensions (voir l'expérience de [102] notamment). La formation d'essaim de particules est flagrante dans les deux situations et demande une étude approfondie pour bien comprendre les différences. Il pourrait aussi être intéressant d'étudier plus en profondeur les fluctuations

---

de vitesse dans un expérience d'écoulement d'un ensemble 2D de particules. Cela pourrait peut-être donner des informations pertinentes pour aider à la compréhension de l'évolution de ces fluctuations de vitesse avec la taille du contenant ([103], [104]).



## Bibliographie

- [1] D. A. Skoog. *Fundamentals of analytical chemistry*. Saunders golden sunburst series. Thomson-Brooks/Cole, 2004.
- [2] M. Bavière. *Basic concepts in enhanced oil recovery processes*, volume 33. Chapman & Hall, 2007.
- [3] C. Cottin, H. Bodiguel, and A. Colin. Drainage in two-dimensional porous media : From capillary fingering to viscous flow. *Phys. Rev. E*, 82(4) :046315, Oct 2010.
- [4] G. M. Whitesides. The origins and the future of microfluidics. *Nature*, 442(7101) :368–373, July 2006.
- [5] P. Tabeling. *Introduction to microfluidics*. Oxford University Press, USA, 2005.
- [6] T. M. Squires and S. R. Quake. Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale. *Rev. Mod. Phys.*, 77(3) :977, Oct 2005.
- [7] L. R. Huang, E. C. Cox, R. H. Austin, and J. C. Sturm. Continuous particle separation through deterministic lateral displacement. *Science*, 304 :987, 2004.
- [8] K. J. Morton, K. Loutharback, D. W. Inglis, O. K. Tsui, J. C. Sturm, S. Y. Chou, and R. H. Austin. Hydrodynamic metamaterials : Microfabricated arrays to steer, refract, and focus streams of biomaterials. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 105(21) :7434–7438, 2008.
- [9] J. A. Davis, D. W. Inglis, K. J. Morton, D. A. Lawrence, L. R. Huang, S. Y. Chou, J. C. Sturm, and R. H. Austin. Deterministic hydrodynamics : Taking blood apart. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 103(40) :14779–14784, 2006.
- [10] S. Yang, A. Undar, and J. D. Zahn. A microfluidic device for continuous, real time blood plasma separation. *Lab Chip*, 6 :871–880, 2006.
- [11] J. P. Beech and J. O. Tegenfeldt. Tuneable separation in elastomeric microfluidics devices. *Lab Chip*, 8 :657–659, 2008.

- [12] K. Loutharback, J. Puchalla, R. H. Austin, and J. C. Sturm. Deterministic microfluidic ratchet. *Phys. Rev. Lett.*, 102(4) :045301, Jan 2009.
- [13] K. Loutharback, K. Chou, J. Newman, J. Puchalla, R. H. Austin, and J. C. Sturm. Improved performance of deterministic lateral displacement arrays with triangular posts. *Microfluidics and Nanofluidics*, 9 :1143–1149, 2010. 10.1007/s10404-010-0635-y.
- [14] P. Garstecki, M. A. Fischbach, and G. M. Whitesides. Design for mixing using bubbles in branched microfluidic channels. *Applied Physics Letters*, 86 :244108, 2005.
- [15] M. Prakash and N. Gershenfeld. Microfluidic bubble logic. *Science*, 315 :832, 2007.
- [16] M. J. Fuerstman, P. Garstecki, and G. M. Whitesides. Coding/decoding and reversibility of droplet trains in microfluidic networks. *Science*, 315 :828, 2007.
- [17] T. Thorsen, R. W. Roberts, F. H. Arnold., and S. R. Quake. Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Phys. Rev. Lett.*, 86(18) :4163–4166, Apr 2001.
- [18] M. Hashimoto, B. Mayers, P. Garstecki, and G. M. Whitesides. Flowing lattices of bubbles as tunable, self-assembled diffraction gratings. *Small*, 2(11) :1292–1298, 2006.
- [19] T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv. Burgers shock waves and sound in a 2d microfluidic droplets ensemble. *Phys. Rev. Lett.*, 103(11) :114502, 2009.
- [20] P. Garstecki, M. J. Fuerstman., and G. M. Whitesides. Oscillations with uniquely long periods in a microfluidic bubble generator. *Nat Phys*, 1(3) :168–171, December 2005.
- [21] A. M. Ga nán Calvo. Self-organized complexity : Polyphonic microfluidics. *Nat Phys*, 1(3) :139–140, December 2005.
- [22] C. N. Baroud, F. Gallaire, and R. Dangla. Dynamics of microfluidic droplets. *Lab Chip*, 10(16) :2032–2045, 2010.
- [23] T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv. Phonons in a one-dimensional microfluidic crystal. *Nat Phys*, 2(11) :743–748, November 2006.
- [24] T. Beatus, R. Bar-Ziv, and T. Tlusty. Anomalous microfluidic phonons induced by the interplay of hydrodynamic screening and incompressibility. *Phys. Rev. Lett.*, 99(12) :124502, 2007.
- [25] J. Happel and H. Brenner. *Low Reynolds number hydrodynamics : with special applications to particulate media*. Kluwer Academic Print on Demand, 1991.
- [26] E. Guyon, J.-P. Hulin, and L. Petit. *Hydrodynamique physique*. L'Editeur : EDP Sciences, 2001.

- [27] E. Lauga and T. R. Powers. The hydrodynamics of swimming microorganisms. *Reports on Progress in Physics*, 72 :096601, 2009.
- [28] M. Manghi, X. Schlagberger, Y. W. Kim, and R. R. Netz. Hydrodynamic effects in driven soft matter. *Soft Matter*, 2(8) :653–668, 2006.
- [29] C. J. Morris and F. K. Forster. Oscillatory flow in microchannels. *Experiments in Fluids*, 36 :928–937, 2004. 10.1007/s00348-003-0776-9.
- [30] H. Diamant, B. Cui, B. Lin, and S. A. Rice. Correlated particle dynamics in concentrated quasi-two-dimensional suspensions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17(49) :S4047, 2005.
- [31] B. Cui, H. Diamant, B. Lin, and S.A. Rice. Anomalous hydrodynamic interaction in a quasi-two-dimensional suspension. *Phys. Rev. Lett.*, 92(25) :258301, Jun 2004.
- [32] F. P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(02) :166–188, 1961.
- [33] S. R. Hodges, O. E. Jensen, and J. M. Rallison. The motion of a viscous drop through a cylindrical tube. *Journal of Fluid Mechanics*, 501(-1) :279–301, 2004.
- [34] M. J. Fuerstman, A. Lai, M. E. Thurlow, S. S. Shevkoplyas, H. A. Stone, and G. M. Whitesides. The pressure drop along rectangular microchannels containing bubbles. *Lab Chip*, 7 :1479–1489, 2007.
- [35] F. Jousse, R. F., D. R. Link, M. J. Fuerstman, and P. Garstecki. Bifurcation of droplet flows within capillaries. *Phys. Rev. E*, 74(3) :036311, 2006.
- [36] M. Sahimi, G. R. Gavalas, and T. T. Tsotsis. Statistical and continuum models of fluid-solid reactions in porous media. *Chemical Engineering Science*, 45(6) :1443 – 1502, 1990.
- [37] W. Engl, M. Roche, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari. Droplet traffic at a simple junction at low capillary numbers. *Phys. Rev. Lett.*, 95(20) :208304, Nov 2005.
- [38] G. Cristobal, J.-P. Benoit, M. Joanicot, and A. Ajdari. Microfluidic bypass for efficient passive regulation of droplet traffic at a junction. *Applied Physics Letters*, 89(3) :034104, 2006.
- [39] M. Schindler and A. Ajdari. Droplet traffic in microfluidic networks : A simple model for understanding and designing. *Phys. Rev. Lett.*, 100(4) :044501, 2008.
- [40] D. A. Sessoms, M. Belloul, W. Engl, M. Roche, L. Courbin, and P. Panizza. Droplet motion in microfluidic networks : Hydrodynamic interactions and pressure-drop measurements. *Phys. Rev. E*, 80(1) :016317, 2009.

- [41] D. A. Sessoms, A. Amon, L. Courbin, and P. Panizza. Complex dynamics of droplet traffic in a bifurcating microfluidic channel : Periodicity, multistability, and selection rules. *Phys. Rev. Lett.*, 105(15) :154501, Oct 2010.
- [42] O. Cybulski and P. Garstecki. Transport of resistance through a long microfluidic channel. *Phys. Rev. E*, 82(5) :056301, Nov 2010.
- [43] O. Cybulski and P. Garstecki. Dynamic memory in a microfluidic system of droplets traveling through a simple network of microchannels. *Lab Chip*, 10(4) :484–493, 2010.
- [44] M. Djalali Behzad, H. Seyed-allaei, and M. R. Ejtehadi. Simulation of droplet trains in microfluidic networks. *Phys. Rev. E*, 82(3) :037303, Sep 2010.
- [45] S. Choi, M. G. Lee, and J.-K. Park. Microfluidic parallel circuit for measurement of hydraulic resistance. *Biomicrofluidics*, 4(3) :034110, 2010.
- [46] V. Labrot, M. Schindler, P. Guillot, A. Colin, and M. Joanicot. Extracting the hydrodynamic resistance of droplets from their behavior in microchannel networks. *Biomicrofluidics*, 3(1) :012804, 2009.
- [47] S. A. Vanapalli, A. G. Banpurkar, D. Ende, M. H. Duits, and F. Mugele. Hydrodynamic resistance of single confined moving drops in rectangular microchannels. *Lab Chip*, 2009.
- [48] Y. Xia and G. M. Whitesides. Soft lithography. *Angewandte Chemie International Edition*, 37(5) :550–575, 1998.
- [49] T. Nisisako and T. Torii. Microfluidic large-scale integration on a chip for mass production of monodisperse droplets and particles. *Lab Chip*, 8 :287–293, 2008.
- [50] P. Garstecki, M. J. Fuerstman, H. A. Stone, and G. M. Whitesides. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic t-junction-scaling and mechanism of break-up. *Lab Chip*, 6 :437–446, 2006.
- [51] M. Belloul, W. Engl, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari. Competition between local collisions and collective hydrodynamic feedback controls traffic flows in microfluidic networks. *Phys. Rev. Lett.*, 102(19) :194502, 2009.
- [52] M ; A. Unger, H.-P. Chou, T. Thorsen, A. Scherer, and S. R. Quake. Monolithic micro-fabricated valves and pumps by multilayer soft lithography. *Science*, 288 :113, 2000.
- [53] B. Mosadegh, C.-H. Kuo, Y.-C. Tung, Y.-S. Torisawa, T. Bersano-Begey, H. Tavana, and S. Takayama. Integrated elastomeric components for autonomous regulation of sequential and oscillatory flow switching in microfluidic devices. *Nat Phys*, 6(6) :433–437, June 2010.



- [54] J. A. Weaver, J. Melin, D. Stark, S. R. Quake, and M. A. Horowitz. Static control logic for microfluidic devices using pressure-gain valves. *Nat Phys*, 6(3) :218–223, March 2010.
- [55] J.-C. Galas, D. Bartolo, and V. Studer. Active connectors for microfluidic drops on demand. *New Journal of Physics*, 11(7) :075027 (11pp), 2009.
- [56] P. Panda, K. P. Yuet, D. Dendukuri, T. A. Hatton, and P. S. Doyle. Temporal response of an initially deflected pdms channel. *New Journal of Physics*, 11(11) :115001, 2009.
- [57] D. Bartolo, G. Degré, P. Nghe, and V. Studer. Microfluidic stickers. *Lab Chip*, 8 :274–279, 2008.
- [58] D. Dendukuri, D. C. Pregibon, J. Collins, T. A. Hatton, and P. S. Doyle. Continuous-flow lithography for high-throughput microparticle synthesis. *Nat Mater*, 5(5) :365–369, May 2006.
- [59] 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*, 21(1) :27–40, 2000.
- [60] S. R. Quake and A. Scherer. From micro- to nanofabrication with soft materials. *Science*, 290(5496) :1536–1540, 2000.
- [61] M. E. Wilson, N. Kota, Y.T. Kim, Y. Wang, D. B. Stolz, P. R. LeDuc, and O. B. Ozdoganlar. Fabrication of circular microfluidic channels by combining mechanical micro-milling and soft lithography. *Lab Chip*, 11 :1550–1555, 2011.
- [62] S. Begolo, G. Colas, J.-L. Viovy, and L. Malaquin. New family of fluorinated polymer chips for droplet and organic solvent microfluidics. *Lab Chip*, 11 :508–512, 2011.
- [63] A. M. Ga nán Calvo. Generation of steady liquid microthreads and micron-sized monodisperse sprays in gas streams. *Phys. Rev. Lett.*, 80(2) :285–288, Jan 1998.
- [64] T. G. Mason and J. Bibette. Shear rupturing of droplets in complex fluids. *Langmuir*, 13(17) :4600–4613, 1997.
- [65] A. M. Ga nán Calvo and J. M. Gordillo. Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing. *Phys. Rev. Lett.*, 87(27) :274501, Dec 2001.
- [66] S.-Y. Teh, R. Lin, L.-H. Hung, and A. P. Lee. Droplet microfluidics. *Lab Chip*, 8 :198–220, 2008.
- [67] M. Joanicot and A. Ajdari. Applied physics : Droplet control for microfluidics. *Science*, 309(5736) :887–888, 2005.

- [68] T. Nisisako, T. Torii, and T. Higuchi. Droplet formation in a microchannel network. *Lab Chip*, 2 :24–26, 2002.
- [69] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone. Formation of dispersions using “flow focusing” in microchannels. *Applied Physics Letters*, 82(3) :364–366, 2003.
- [70] M. Seo, C. Paquet, Z. Nie, S. Xu, and E. Kumacheva. Microfluidic consecutive flow-focusing droplet generators. *Soft Matter*, 3 :986–992, 2007.
- [71] P. Garstecki, H. A. Stone, and G. M. Whitesides. Mechanism for flow-rate controlled breakup in confined geometries : A route to monodisperse emulsions. *Phys. Rev. Lett.*, 94(16) :164501, Apr 2005.
- [72] T. Thorsen, S. J. Maerkl, and S. R. Quake. Microfluidic Large-Scale Integration. *Science*, 298(5593) :580–584, 2002.
- [73] N. Coq. *Battement de flagelles artificiels : Dynamique individuelle et collective*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2010.
- [74] N. Champagne, R. Vasseur, A. Montourcy, and D. Bartolo. Traffic jams and intermittent flows in microfluidic networks. *Phys. Rev. Lett.*, 105(4) :044502, Jul 2010.
- [75] F. Jousse, G. Lian, R. Janes, and J. Melrose. Compact model for multi-phase liquid-liquid flows in micro-fluidic devices. *Lab Chip*, 5 :646–656, 2005.
- [76] J. D. Jackson and R. F. Fox. *Classical electrodynamics*. John Wiley and Sons, 1998.
- [77] A. Eri and K. Okumura. Viscous drag friction acting on a fluid drop confined in between two plates. *Soft Matter*, 7 :5648–5653, 2011.
- [78] C. Enaud. *Processus d’exclusion asymétrique : Effet du désordre, Grandes déviations et fluctuations*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2005.
- [79] B. Derrida, M. Evans, and K. Mallick. Exact diffusion constant of a one-dimensional asymmetric exclusion model with open boundaries. *Journal of Statistical Physics*, 79(5) :833–874, June 1995.
- [80] B. Derrida, E. Domany, and D. Mukamel. An exact solution of a one-dimensional asymmetric exclusion model with open boundaries. *J. Stat. Phys.*, 69 :667–687, 1992.
- [81] E. D. Andjel, M. Bramson, and T. M. Liggett. Shocks in the asymmetric exclusion process. *Prob. Theory Related Fields*, 78 :231–244, 1988.
- [82] C. Appert and L. Santen. Modélisation du trafic routier par des automates cellulaires. *Actes INRETS*, 100, 2002.

- [83] D. Helbing. Traffic and related self-driven many-particle systems. *Rev. Mod. Phys.*, 73(4) :1067–1141, Dec 2001.
- [84] B. S. Kerner and H. Rehborn. Experimental properties of complexity in traffic flow. *Phys. Rev. E*, 53(5) :R4275–R4278, May 1996.
- [85] K. Nagel and M. Schreckenberg. A cellular automaton model for freeway traffic. *Journal de Physique I*, 2(12) :2221–2229, dec 1992.
- [86] T. Musha and H. Higuchi. Traffic current fluctuation and the burgers equation. *Japanese Journal of Applied Physics*, 17(5) :811–816, 1978.
- [87] T. Nagatani. The physics of traffic jams. *Reports on Progress in Physics*, 65(9) :1331, 2002.
- [88] V. J. Blue and J. L. Adler. Cellular automata microsimulation for modeling bi-directional pedestrian walkways. *Transportation Research Part B : Methodological*, 35(3) :293–312, 2001.
- [89] G. Baglietto and D. R. Parisi. Continuous-space automaton model for pedestrian dynamics. *Phys. Rev. E*, 83(5) :056117, May 2011.
- [90] Y. Sugiyama, M. Fukui, M. Kikuchi, K. Hasebe, A. Nakayama, K. Nishinari, S. Tadaki, and S. Yukawa. Traffic jams without bottlenecks : an experimental evidence for the physical mechanism of the formation of a jams. *New Journal of Physics*, 10(3) :033001, 2008.
- [91] N. Champagne, E. Lauga, and D. Bartolo. Stability and non-linear response of 1d microfluidic-particle streams. *Submitted*, 2011.
- [92] P. S. Dittrich, M. Jahnz, and P. Schwillle. A new embedded process for compartmentalized cell-free protein expression and on-line detection in microfluidic devices. *ChemBioChem*, 6(5) :811–814, 2005.
- [93] J. Fattaccioli, J. Baudry, J.-D. Emerard, E. Bertrand, C. Goubault, N. Henry, and J. Biette. Size and fluorescence measurements of individual droplets by flow cytometry. *Soft Matter*, 5 :2232–2238, 2009.
- [94] G. B. Witham. *Linear and nonlinear waves*. Wiley-Interscience, 1974.
- [95] J.M. Bony. *Cours d'analyse : théorie des distributions et analyse de Fourier*. Editions Ecole Polytechnique, 2001.
- [96] P. D. Lax, P. Lax, and B. Wendroff. Systems of conservation laws. In Peter Sarnak and Andrew Majda, editors, *Selected Papers Volume I*, pages 263–283. Springer New York, 2005.

- [97] J.R. Gilbert, C. Moler, and R. Schreiber. *Sparse matrices in MATLAB : Design and implementation*. Citeseer, 1991.
- [98] M.C. Jullien, M.J.T.M. Ching, C. Cohen, L. Menetrier, and P. Tabeling. Droplet breakup in microfluidic t-junctions at small capillary numbers. *Physics of Fluids*, 21 :072001, 2009.
- [99] J. Lee and J. Koplik. Network model for deep bed filtration. *Physics of Fluids*, 13(5) :1076–1086, 2001.
- [100] M. Baron, J. Blawdziewicz., and E. Wajnryb. Hydrodynamic crystals : Collective dynamics of regular arrays of spherical particles in a parallel-wall channel. *Phys. Rev. Lett.*, 100(17) :174502, Apr 2008.
- [101] J. Blawdziewicz, R. H. Goodman, N. Khurana, E. Wajnryb, and Y.-N. Young. Non-linear hydrodynamic phenomena in stokes flow regime. *Physica D : Nonlinear Phenomena*, 239(14) :1214 – 1224, 2010. Special issue in celebration of the 60th birthday of K.R. Sreenivasan.
- [102] F. Rouyer., D. Lhuillier, J. Martin, and D. Salin. Structure, density, and velocity fluctuations in quasi-two-dimensional non-brownian suspensions of spheres. *Physics of Fluids*, 12 :958, 2000.
- [103] E. Guazzelli and J. Hinch. Fluctuations and instability in sedimentation. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 43 :97–116, 2011.
- [104] S.-Y. Tee, P.J. Mucha, L. Cipelletti, S. Manley, M.P Brenner, P.N. Segre, and D.A. Weitz. Nonuniversal velocity fluctuations of sedimenting particles. *Phys. Rev. Lett.*, 89(5) :054501, Jul 2002.

# Abstract

This thesis is devoted to the transport of particles in confined geometries. An original approach is developed, based on new home-made microfluidic tools. First, we study the traffic of particles in microfluidic obstacles networks. Due to hydrodynamics interactions between particles, we show that the traffic dynamics is a nonlinear process : the particle current does not scale with the particle density. We also establish that there exists a maximal current above which no stationary particle flow can be sustained.

Then, we study the dynamic response of 1D droplet streams to finite-amplitude longitudinal perturbations. We experimentally and theoretically show that the nonlinear constitutive equation relating particle current to particle density leads to Burgers equation for the droplet stream density.

Afterwards, we focus on the flow resulting from high current values in a 2D obstacles network. We observe an intermittent dynamics with avalanche phenomena. To rationalize this, we develop a numerical code close to a cellular automaton. This numerical model turns out to be effective to represent the flow of confined particles in a network of pipes.

To conclude, we present the start of an experimental work. It consists in flowing a 2D crystal of solid particles. In such a configuration, hydrodynamic interactions seem to destabilize the lattice of any 2D crystals.

**Keywords :** microfluidics, microhydrodynamics, hydrodynamic interactions, network, traffic, droplet, Burgers, cellular automaton, emulsion.

## Résumé

Filtration, récupération assistée du pétrole, flux sanguin, ... La compréhension des écoulements dans ces exemples repose sur la connaissance du transport de particules en milieu confiné. Plus généralement, dans ces situations se pose la question de l'influence des interactions entre particules sur le comportement général de l'écoulement. Pour répondre à cela, une approche expérimentale originale est proposée, basée sur la création de nouveaux outils microfluidiques.

Dans une première partie, nous étudions la dynamique du trafic de gouttes (suspension diluée) dans des réseaux d'obstacles microfluidiques. La présence des interactions hydrodynamiques entre particules rend cet écoulement non linéaire et il peut alors être parfaitement décrit par une équation dynamique de Burgers, rationalisant ainsi la présence des chocs de densité observés expérimentalement. Nous avons aussi fait ressortir de notre étude des paramètres généraux qui, non seulement sont utiles en microfluidique, mais s'avèrent pertinents à l'étude des différents domaines de trafic (voiture, piétons, ...).

Ce travail est poursuivi par l'étude du transport d'une suspension concentrée 2D. Cet écoulement, gouverné par une dynamique intermittente, a été compris à travers une approche numérique, rendant compte de la phénoménologie d'avalanche constatée. Ce code s'avère ainsi être efficace quant à l'interprétation de l'écoulement de particules dans des réseaux de tubes, modèle simple des milieux poreux.

**Mots clés :** microfluidique, micro-hydrodynamique, interactions hydrodynamiques, réseau, trafic, goutte, Burgers, automate cellulaire, émulsion.