

# Contrôle tout-optique du cycle de la vie d'une gouttelette en microcanal

Matthieu ROBERT DE SAINT VINCENT<sup>1,\*</sup>, François GALLAIRE<sup>2</sup>, Régis WUNENBURGER<sup>1</sup>,  
Charles BAROUD<sup>3</sup>, et Jean-Pierre DELVILLE<sup>1</sup>

<sup>1</sup> CPMOH, Université Bordeaux 1, 351 cours de la Libération, 33405 Talence cedex

<sup>2</sup> Laboratoire J.-A. Dieudonné, Université de Nice – Sophia Antipolis, Parc Valrose, 06108 Nice cedex 02

<sup>3</sup> LadHyX, École Polytechnique, 91128 Palaiseau cedex

\* e-mail : [m.st-vincent@cpmoh.u-bordeaux1.fr](mailto:m.st-vincent@cpmoh.u-bordeaux1.fr)

## Résumé :

La formation et le transport d'une gouttelette dans un microcanal sont généralement imposés par la géométrie figée de ce microcanal. Pour surmonter cette contrainte, nous présentons une nouvelle approche basée sur la génération par laser de contraintes thermocapillaires localisées. Nous parvenons ainsi à contrôler sans contact ni microfabrication dédiée le débit et la taille des gouttelettes émises (vanne et calibreur), à trier ces gouttes (aiguillage), à les forcer optiquement à coalescer (mélangeur) ou au contraire à forcer la rupture en deux gouttes filles de taille contrôlée (diviseur). Utilisés en combinaison, ces nouveaux microcomposants hydrauliques élémentaires ouvrent la voie vers une approche tout-optique du laboratoire sur puce.

## Abstract :

*Droplet's generation and transport in a microchannel are usually imposed by the fixed geometry of this microchannel. To overcome this constraint, we present a novel approach based on laser-mediated generation of localized thermocapillary stresses. We are thus able to control without any mechanical contact nor specific microfabrication the rate and size of emitted droplets (valve and tuner), to sort these drops (sorter), to optically impose them to fuse (mixer) or, conversely, to force the breaking in two daughter drops with controlled size (sampler). By combining them, these new hydraulic microdevices open the route toward an all-optical approach of the lab-on-a-chip.*

## Mots-clefs :

**Effet thermocapillaire ; Microfluidique ; Laser**

## 1 Introduction

Les écoulements multiphasiques à petite échelle suscitent un intérêt croissant dans le cadre des microsystèmes et plus particulièrement le concept de laboratoire sur puce (Günther *et al.* (2006)). Les problématiques liées à ces écoulements sont variées : engendrer et contrôler ces écoulements, contrôler les transferts de masse (mélange) et enfin appliquer ces méthodes à la chimie (synthèse en phase liquide, analyses, etc.).

Le cycle de vie d'une gouttelette est constitué par sa formation, son transport et son éventuelle division ou fusion avec d'autres gouttes. La géométrie du microcanal permet de contrôler tout ou partie de ce cycle (Link *et al.* (2004)) mais fige le système sans modification ultérieure possible. Modifier les conditions d'injection des fluides (Anna *et al.* (2003), Thorsen *et al.* (2001), Dreyfus *et al.* (2003)) ne permet pas non plus un contrôle instantané et individuel des gouttes. Certaines techniques existent pour modifier les conditions de transport (dévier, trier) des gouttelettes, notamment à partir de champs électriques (Ahn *et al.* (2006), Link *et al.* (2006)). Enfin, des effets thermiques permettent de diriger des gouttes (Darhuber *et al.* (2003), Farahi *et al.* (2004), Sammarco *et al.* (1999)) pour éventuellement les faire coalescer (Darhuber *et al.* (2003)). Toutes ces techniques imposent toutefois une microfabrication dédiée ou un

traitement préalable du microcanal.

La méthode que nous proposons est quant à elle sans contact, permet un contrôle individuel et instantané des gouttelettes et ne nécessite aucune microfabrication dédiée. Elle utilise un couplage thermocapillaire (ou Marangoni) induit localement par une onde laser.

## 2 Écoulements induits par effet thermocapillaire

La tension interfaciale  $\sigma$  entre deux liquides non miscibles est une fonction généralement décroissante de la température  $T$ . Ainsi, une goutte immergée dans un liquide soumise à un gradient de température subit un gradient de tension de surface, qui engendre une contrainte visqueuse sur chacun des fluides. Un écoulement superficiel en résulte, dirigé vers la zone de tension de surface la plus élevée (zone la plus froide si  $\sigma$  décroît avec  $T$ ). Cet écoulement diffuse dans le volume. La conservation de la quantité de mouvement impose alors un déplacement de la goutte en sens opposé (Young *et al.* (1959)).

La vitesse de déplacement d'une goutte dans un milieu infini soumis à un gradient thermique macroscopique (Young *et al.* (1959)) dépend donc du gradient de température et non de la température elle-même. Un chauffage local, même modéré, constitue ainsi un moyen pertinent d'engendrer cet écoulement. D'autre part, si l'écoulement se produit en volume, il a pour origine un effet de surface. L'effet thermocapillaire semble donc particulièrement pertinent dans le cadre du contrôle d'écoulements multiphasiques à petite échelle, où les effets surfaciques dominent les effets volumiques.

Il est possible d'engendrer un échauffement local de l'interface en y focalisant un faisceau laser naturellement absorbé par l'une des deux phases. Une goutte flottant à la surface d'un liquide plus dense (Rybalko *et al.* (2004)), ou encore une goutte déposée sur un substrat avec un angle de contact non nul (Kotz *et al.* (2004)), ont ainsi été mises en mouvement.

## 3 Manipulation de gouttelettes en microcanal

### 3.1 Dispositif expérimental

Le chauffage de l'interface est assuré par un laser à argon ionisé continu ( $\lambda = 514,5 \text{ nm}$ ), focalisé au moyen d'un objectif de microscope ( $\times 2,5$ , O.N. 0,08 ;  $\times 5$ , O.N. 0,15 ou  $\times 10$ , O.N. 0,25). De la fluorescéine a été ajoutée dans l'eau (0,1 % w/w) pour la rendre absorbante à cette longueur d'onde.

Les microcanaux sont réalisés en PDMS (poly-diméthyl siloxane), gravés par lithographie molle et collés par plasma sur une lame de verre. L'écoulement de base est formé en injectant les fluides (hexadécane + Span 80 — un tensioactif — à 2 % w/w, eau + fluorescéine) à débit constant ou à pression constante. Dans le premier cas, le débit est imposé par l'utilisation de pousse-seringues. Dans le second cas, des réservoirs sont maintenus à une hauteur  $H$  déterminée et la pression hydrostatique  $p = \rho g H$  est le moteur de l'écoulement.

### 3.2 Contrôle de l'émission de gouttes : vanne, calibreur

Nous considérons ici un microcanal de géométrie "en croix", où l'eau est introduite dans le canal central et l'huile dans les deux canaux latéraux. Des gouttes d'eau se forment par pincement hydrodynamique à l'intersection de ces canaux. Elles sont émises à intervalle de temps  $t_0$  régulier ( $t_0 \simeq 2 \text{ s} \pm 0,5 \text{ s}$ ), et sont caractérisées par leur longueur,  $L \simeq 330 \mu\text{m}$  ( $\pm 15 \%$ ), et leur vitesse,  $v \simeq 1,2 \text{ mm/s}$  ( $\pm 15 \%$ ). Ces valeurs ont été obtenues aussi bien à pression constante qu'à débit constant par un choix convenable des hauteurs ou des débits.

Lorsque le front de la goutte atteint la position du spot laser et que la puissance laser est supérieure à une valeur seuil, la goutte est bloquée (figure 1). On observe que la durée de ce blocage,  $\tau$ , croît linéairement avec la puissance, la pente dépendant du col du faisceau  $\omega_0$  (figure 2). L'incidence du blocage sur la formation de la goutte est cependant différente selon que l'injection se fait à pression constante ou à débit constant.

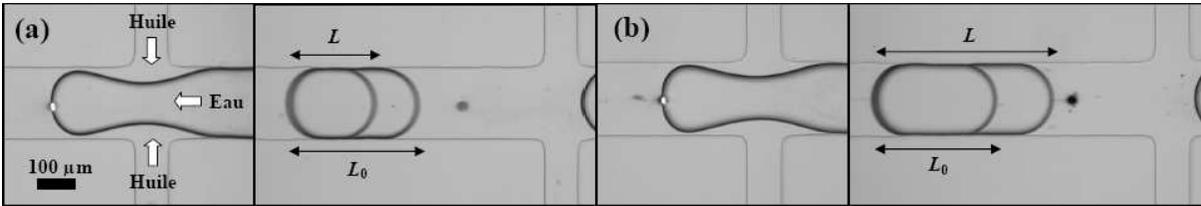


FIG. 1 – Blocage de l'écoulement par laser. L'image de droite est la superposition d'une goutte bloquée (longueur  $L$ ) et d'une goutte non bloquée (longueur  $L_0$ ). (a) Écoulement à pression constante.  $L_0 = 355 \mu\text{m}$ ,  $L = 240 \mu\text{m}$ ,  $p_{\text{huile}} = 3,95 \text{ kPa}$  et  $p_{\text{eau}} = 3,90 \text{ kPa}$ . (b) Écoulement à débit constant.  $L_0 = 334 \mu\text{m}$ ,  $L = 479 \mu\text{m}$ ,  $Q_{\text{huile}} = 0,3 \mu\text{L}/\text{min}$  et  $Q_{\text{eau}} = 0,120 \mu\text{L}/\text{min}$ . Puissance laser  $P = 93 \text{ mW}$ , col du faisceau  $\omega_0 = 2,6 \mu\text{m}$ .

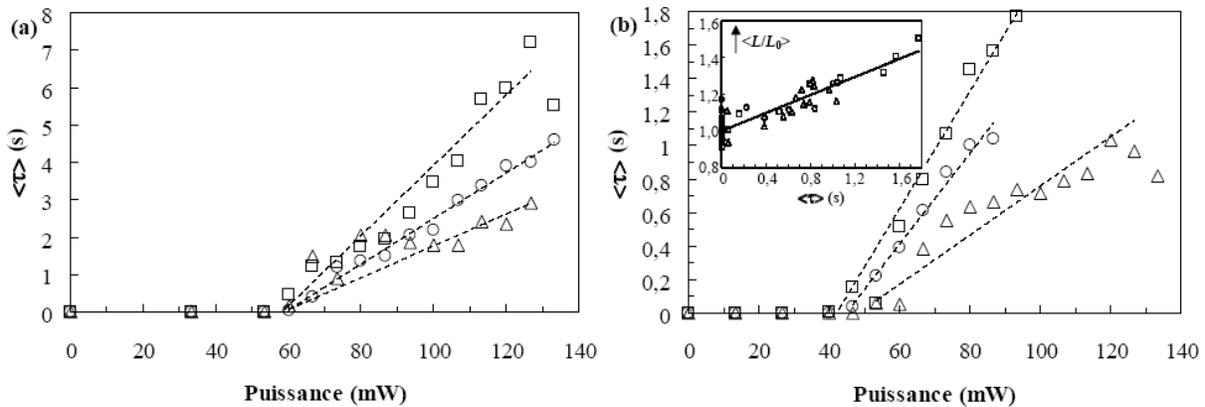


FIG. 2 – Temps de blocage  $\tau$  en fonction de la puissance (a) à pression constante et (b) à débit constant. Les points sont des moyennes sur plusieurs gouttes. Les droites pointillées sont des guides de lecture. Encart : longueur des gouttes normalisée par  $L_0$  en fonction de  $\tau$  (valeurs moyennes). La droite correspond à la conservation du débit. Col du faisceau :  $\omega_0 = 2,6 \mu\text{m}$  (carrés),  $5,2 \mu\text{m}$  (cercles),  $10,3 \mu\text{m}$  (triangles).

### 3.2.1 Injection à pression constante

Des temps de blocage atteignant jusqu'à  $7 \text{ s}$  ( $\sim 4t_0$ ) ont été observés (figure 2(a)). Pendant le blocage on remarque un amincissement du "cou" à l'intersection des canaux : l'interface eau-huile semble rebrousser chemin sous la pression de l'huile. La goutte, formée après dégagement de l'interface bloquée, est ainsi plus petite (30 % en moyenne, quelle que soit la puissance) que celle qui se serait formée sans laser.

Le montage à pression constante permet de réduire de façon contrôlée la fréquence d'émission des gouttes, tout en produisant des gouttes plus petites. Le débit d'eau se trouve donc diminué, ce montage constitue une vanne optique.

### 3.2.2 Injection à débit constant

Le temps de blocage est inférieur à celui obtenu avec l'injection des fluides à pression constante (figure 2(b)). On observe cette fois un gonflement du "cou", l'interface eau-huile semblant ici avancer dans le sens de l'écoulement. Dans ce cas, la taille de la goutte ainsi formée dépend alors linéairement du temps de blocage (encart de la figure 2(b)) : la relation liant taille de goutte et temps de blocage n'est autre que la conservation du débit.

Ce montage permet de contrôler la taille des gouttes émises, *via* le temps de blocage (donc le couple puissance laser-col du faisceau). Il s'agit d'un calibreur de gouttes.

### 3.3 Transport et division de gouttes : diviseur ou aiguilleur

Un autre moyen de calibrer des gouttes consiste à utiliser une jonction en "T" asymétrique (Link *et al.* (2004)). La goutte qui s'écoule dans le canal central se divise à l'intersection en deux gouttes filles dont la longueur dépend de l'asymétrie des canaux de sortie. Si ceux-ci sont symétriques, les deux gouttes filles ont la même longueur.

L'asymétrie du canal peut être simulée en positionnant le faisceau laser près d'un des canaux de sortie : le laser empêche temporairement l'écoulement dans ce canal et la goutte s'écoule préférentiellement dans l'autre. On obtient alors des gouttes filles de tailles différentes (figure 3(a)). Cette asymétrie est mesurée par le rapport d'aspect moyen,  $\Lambda = \langle \frac{L_1 - L_2}{L_1 + L_2} \rangle$ , où  $L_1$  et  $L_2$  sont les longueurs des deux gouttes filles. Les valeurs extrémales  $\Lambda = 0$  et  $\Lambda = 1$  correspondent respectivement à la symétrie et au passage de toute la goutte vers l'un des deux canaux. La figure 3(b) représente le rapport d'aspect moyen en fonction de la puissance. Deux régimes apparaissent. Lorsque la puissance est inférieure à une valeur critique ( $P_{critique} \simeq 100$  mW dans ce cas), la goutte se divise et le rapport d'aspect croît avec la puissance. Au-dessus de cette valeur, la goutte ne se divise pas et est entièrement dirigée vers le canal non bloqué.

On peut expliquer simplement cette transition en considérant qu'au-delà de  $P_{critique}$  le temps de blocage est suffisamment long pour que la partie amont de la goutte prenne une forme circulaire. L'interface eau-huile décolle alors du bord du microcanal, ouvrant ainsi un chemin pour l'huile qui pousse la goutte vers le canal de sortie opposé (figure 3(c)).

Les deux régimes présentés par ce montage permettent ainsi de réaliser, selon la puissance, soit un diviseur de goutte, soit un aiguilleur. Orienter sélectivement des gouttes suivant leur nature (absorbante ou transparente à la longueur d'onde considérée) pourrait constituer un moyen de les trier.

### 3.4 Fusion de gouttes

La fusion de gouttes est une condition nécessaire pour engendrer des réactions chimiques. Cependant, elle ne peut se produire spontanément en microcanal par la simple mise en contact des gouttes, du fait de la présence de tensioactif (Amarouchène *et al.* (2001)). Nous avons pu forcer optiquement la coalescence de gouttes. Une première goutte, maintenue bloquée par le laser, est rattrapée et poussée par la goutte suivante. Les deux gouttes maintenues en contact s'écoulent alors ensemble. Lorsque leur interface commune se rapproche de l'axe du faisceau, les deux gouttes coalescent. Cette séquence est représentée sur la figure 4(a). De la même manière, nous avons observé la coalescence d'un train de gouttes (figure 4(b)). Dans ce cas les gouttes ne sont pas bloquées mais elles sont toutes au contact lors de l'écoulement. La coalescence se produit alors systématiquement, comme l'illustrent les cinq gouttes considérées sur la figure 4(b).

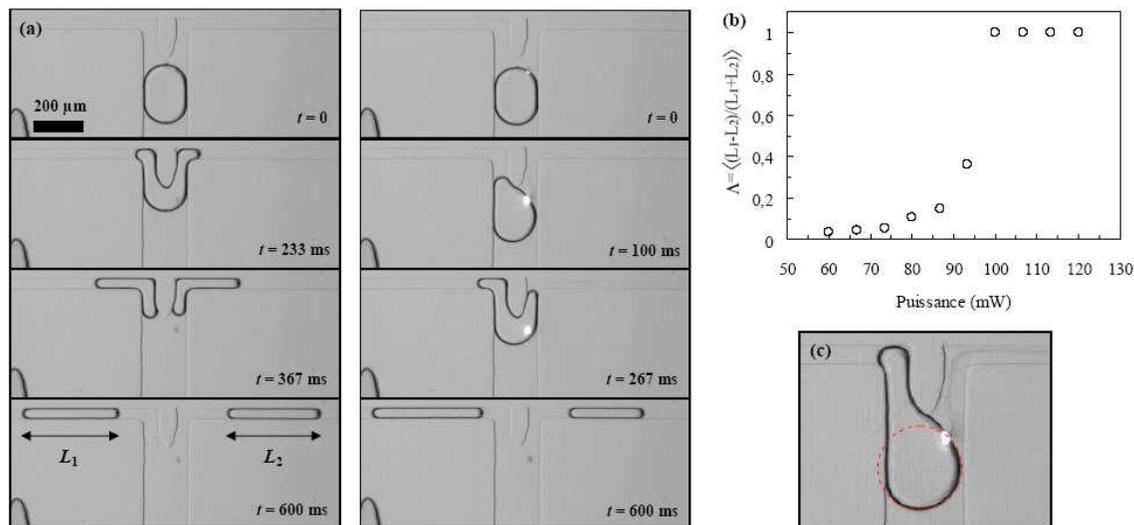


FIG. 3 – Diviseur de gouttes. (a) En l'absence d'excitation laser (à gauche), la goutte se scinde en deux gouttes de taille pratiquement égale. Le forçage laser (à droite) permet de briser cette symétrie de manière contrôlée. Ici  $Q_{eau} = 0,02 \mu\text{L}/\text{min}$ ,  $Q_{huile} = 0,2 \mu\text{L}/\text{min}$ ,  $P = 87 \text{ mW}$  et  $\omega_0 = 5,2 \mu\text{m}$ . (b) Rapport d'aspect moyen en fonction de la puissance à ces mêmes débits et col de faisceau. (c) Image de la goutte à l'instant où elle décolle du bord du microcanal, à  $P = 107 \text{ mW} > P_{critique}$ .

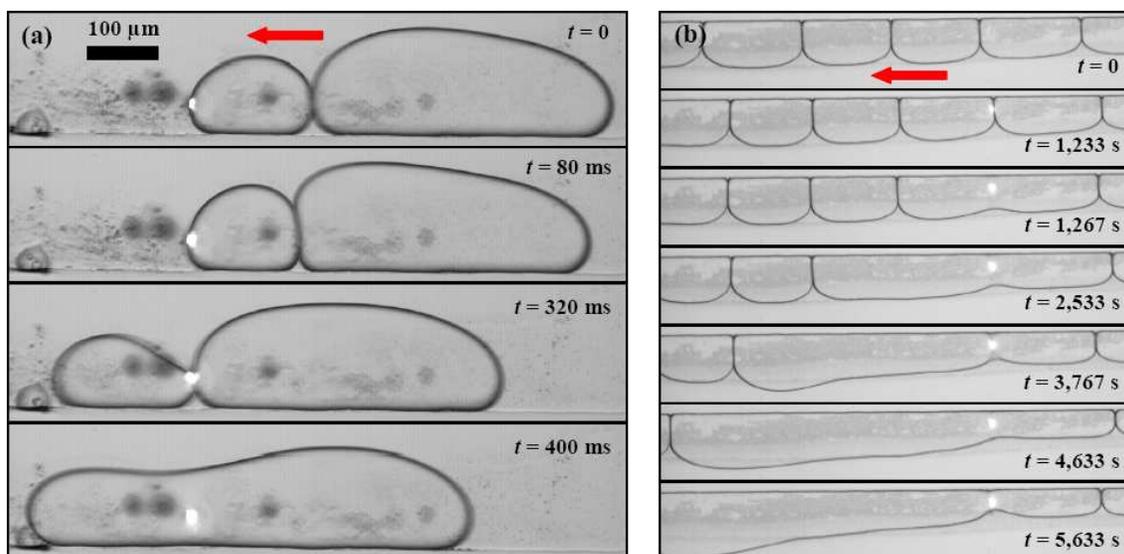


FIG. 4 – Coalescence de gouttes forcée optiquement. (a) Fusion de deux gouttes successives ( $Q_{eau} = 0,2 \mu\text{L}/\text{min}$ ,  $Q_{huile} = 0,9 \mu\text{L}/\text{min}$ ,  $P = 67 \text{ mW}$  et  $\omega_0 = 2,6 \mu\text{m}$ ). (b) Fusion d'une assemblée de gouttes successives — 5 dans ce cas ( $Q_{eau} = 0,2 \mu\text{L}/\text{min}$ ,  $Q_{huile} = 0,3 \mu\text{L}/\text{min}$ ,  $P = 67 \text{ mW}$  et  $\omega_0 = 5,2 \mu\text{m}$ ). Les flèches indiquent le sens de l'écoulement.

#### 4 Conclusions et perspectives

La méthode que nous proposons consiste à engendrer par laser un couplage thermocapillaire sur une interface entre deux liquides non miscibles. Son utilisation en microfluidique semble prometteuse car elle est favorisée par la dominance des effets de surface sur les effets de volume

aux petites échelles. Elle allie les avantages de la manipulation optique (individuelle, instantanée et sans contact) de gouttelettes à ceux de l'environnement rigide d'un microcanal.

Les fonctions élémentaires que nous avons réalisées (vanne, calibreur, diviseur, aiguilleur et fusionneur de gouttes) peuvent être combinées, notamment *via* l'utilisation d'un miroir galvanométrique ou l'adressage d'un réseau holographique. De telles combinaisons ouvrent donc la voie à une approche tout-optique du laboratoire sur puce, sans microfabrication spécifique ou partie mobile.

## Références

- Ahn, K., Kerbage, C., Hunt, T. P., Westervelt, R. M., Link, D. R., Weitz, D. A. 2006 Dielectrophoretic manipulation of drops for high-speed microfluidic sorting devices. *Appl. Phys. Lett.* **88** 024104
- Amarouchène, Y., Cristobal, G., Kellay, H. 2001 Noncoalescing drops. *Phys. Rev. Lett.* **87** 206104
- Anna, S. L., Bontoux, N., Stone, H. A. 2003 Formation of dispersions using "flow focusing" in microchannels. *Appl. Phys. Lett.* **82** 364
- Darhuber, A. A., Valentino, J. P., Davis, J. M., Troian, S. M., Wagner, S. 2003 Microfluidic actuation by modulation of surface stresses. *Appl. Phys. Lett.* **82** 657
- Dreyfus, R., Tabeling, P., Willaime, H. 2003 Ordered and disordered patterns in two-phase flows in microchannels. *Phys. Rev. Lett.* **90** 144505
- Farahi, R. H., Passian, T. L., Thundat, T. 2004 Microfluidic manipulation via Marangoni forces. *Appl. Phys. Lett.* **85** 4237
- Günther, A., Jensen, K. F. 2006 Multiphase microfluidics : from flow characteristics to chemical and material synthesis. *Lab Chip* **6** 1487
- Kotz, K. T., Noble, K. A., Faris, G. W. 2004 Optical microfluidics. *Appl. Phys. Lett.* **85** 2658
- Link, D. R., Anna, S. L., Weitz, D. A., Stone, H. A. 2004 Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices. *Phys. Rev. Lett.* **92** 054503
- Link, D. R., Grasland-Mongrain, E., Duri, A., Sarrazin, F., Zhengdong, C., Cristobal, G., Marquez, M., Weitz, D. A. 2006 Electric control of droplets in microfluidic devices. *Angew. Chem. Int. Ed.* **45** 2556
- Rybalko, S., Magome, N., Yoshikawa, K. 2004 Forward and backward laser-guided motion of an oil droplet. *Phys. Rev. E* **70** 046301
- Sammarco, T. S., Burns, M. A. 1999 Thermocapillary pumping of discrete drops in microfabricated analysis devices. *AIChE J.* **45** 350
- Thorsen, T., Roberts, R. W., Arnold, F. H., Quake, S. R. 2001 Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Phys. Rev. Lett.* **86** 4163
- Young, N. O., Goldstein, J. S., Block, M. J. 1959 The motion of bubbles in a vertical temperature gradient. *J. Fluid Mech.* **6** 350