



**HAL**  
open science

# Vieillessement biologique d'une interface eau/air : caractérisation rhéologique par des ondes capillaires

Cyril Picard, Laurent Davoust

## ► To cite this version:

Cyril Picard, Laurent Davoust. Vieillessement biologique d'une interface eau/air : caractérisation rhéologique par des ondes capillaires. 17e Congrès Français de Mécanique (CFM) 2005, Aug 2005, Troyes, France. hal-00203999

**HAL Id: hal-00203999**

**<https://hal.science/hal-00203999v1>**

Submitted on 27 Apr 2023

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

# Vieillessement biologique d'une interface eau-air : caractérisation rhéologique par des ondes capillaires

Cyril Picard & Laurent Davoust

LEGI - BP 53 - 38041 Grenoble Cedex 9  
cyril.picard@hmg.inpg.fr

## Résumé :

*Dans l'optique de développement d'un dispositif sensible pour la détection de biomolécules, une méthodologie fondée sur l'évolution de la rhéologie d'une interface argon/eau est proposée [1]. La déformation par des ondes capillaires d'une interface contaminée, apparaît comme un moyen idéal d'identifier son module d'élasticité et sa tension de surface. Les grandeurs d'intérêt que sont le nombre d'onde complexe et la fréquence d'agitation sont obtenues par l'intermédiaire d'une technique optique permettant la détermination précise de la géométrie de l'interface. Ces deux grandeurs ainsi qu'un modèle mathématique reposant sur une relation de dispersion sont utilisés conjointement afin d'identifier la rhéologie dilatationnelle de l'interface [2]. La méthodologie est validée en utilisant l'acide palmitique comme surfactant.*

## Abstract :

*As an attempt to develop a sensitive device for biomolecule detection, a micromechanical methodology, based on the rheological change of an argon/water interface is put forward [1]. Capillary waves induced from the vertical electrodynamic vibration of a brimfull cylindrical tank, filled with water, stand as a good way to identify elasticity modulus and surface tension of an ageing interface. Of prior interest for us, the complex wave number and the frequency of the waves are obtained through an optical technique, which allow us to recognise accurately the whole interface geometry. These two parameters and a modeling based on a dispersion relation are jointly used to identify the dilational rheology of the interface [2]. The validity of the methodology is assessed making use of palmitic acid as surfactant.*

## 1 Introduction

Nous proposons une technique novatrice de détection de matériel biologique, fondée sur les propriétés rhéologiques d'une interface argon/eau fonctionnalisée à laquelle des biomolécules peuvent s'adsorber. Il a été démontré [3] que la pression de surface est, notamment, sensible au phénomène d'hybridation de brins d'ADN cibles, solubilisés, à des brins d'ADN sondes préalablement adsorbés à une monocouche lipidique étalée à une interface. L'objectif de cet article est la mise au point d'un diagnostic rhéologique, fondé sur l'étirement de l'interface, dont la sensibilité est *a priori* supérieure à celle d'une mesure de pression de surface, seule. A la différence des dispositifs de mesure rhéologique, habituellement utilisés [4], incompatibles avec la plupart des exigences liées à la manipulation de matériel biologique, une technique non-intrusive, fondée sur une quantité de réactif limitée et permettant d'éviter toute contamination extérieure est envisagée.

Un petit récipient cylindrique, rempli à ras bord d'une solution aqueuse maintenue sous atmosphère neutre d'argon, est agité verticalement. Le réseau d'onde capillaire ainsi créé à l'interface argon/eau, fonctionnalisée, induit une déformation axisymétrique de cette interface dont la géométrie est susceptible d'évoluer au cours de l'adsorption de molécules cibles sur les sites fonctionnels de l'interface. Deux techniques optiques sont développées afin de suivre les modifications de la géométrie de l'interface. Une méthode reposant sur la réfractométrie permet de

reconstruire précisément l'intégralité de la géométrie de l'interface alors qu'une méthode d'interférométrie est développée pour enregistrer en temps réel l'élévation de l'interface au centre du récipient. On présente ici uniquement la première technique qui permet à elle seule l'identification des paramètres rhéologiques de l'interface (tension de surface, élasticité interfaciale et viscosité interfaciale).

## 2 Approche hydrodynamique

### 2.1 Ondes quasi-stationnaires

Nous considérons une surface libre, limitée par une ligne triple circulaire de rayon  $r_e$ , séparant une phase gazeuse, dont on négligera les effets, d'une phase aqueuse. On considère que l'interface au repos appartient au plan d'altitude  $z = 0$  et que la phase aqueuse se trouve dans le demi espace  $z < 0$ .

Comme le précisent Saylor *et al* [5], l'oscillation de la ligne triple, à la pulsation  $\omega$  engendre des ondes cylindriques se propageant vers le centre de l'interface où elles se réfléchissent formant ainsi des ondes cylindriques se propageant en sens inverse vers des rayons de plus en plus grands. La superposition de ces ondes voyageant en sens opposé et subissant une atténuation radiale, donne naissance à un réseau d'onde quasi-stationnaire concentrique. En considérant que l'amplitude des ondes est suffisamment faible, on peut modéliser le comportement de la solution aqueuse à l'aide de l'équation de Navier-Stokes linéarisée. Les solutions de cette équation sont largement décrites dans la littérature ([2],[6]) et reposent sur une décomposition de Helmholtz du champ de vitesse qui s'écrit alors comme la somme d'un champ de vitesse potentiel et d'un champ de vitesse rotationnel dérivant, respectivement, d'un potentiel d'amplitude  $A$  et d'une fonction de courant d'amplitude  $B$ . Par suite, la déformée verticale de la surface libre en tout point situé à une distance  $r$  du centre de l'interface s'écrit en notation complexe :

$$\hat{\zeta} = \frac{kB + ikA}{\omega} J_0(kr) e^{i\omega t} = \zeta_0 J_0(kr) e^{i(\omega t + \phi)} . \quad (1)$$

où  $\zeta_0$  et  $\phi$  sont tels que :

$$\zeta_0 = \left| \frac{kB + ikA}{\omega} \right| \quad \text{et} \quad \phi = \arg \left( \frac{kB + ikA}{\omega} \right) . \quad (2)$$

La déformée physique  $\zeta$ , qui seule nous intéresse ici, correspond à la partie réelle de  $\hat{\zeta}$ .

La notation  $J_0$  désigne la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 0.

Le nombre d'onde complexe  $k$  est défini à l'aide du nombre d'onde  $\kappa$ , inverse de la longueur d'onde, et du facteur d'atténuation radiale  $\beta$  qui permet de rendre compte de la dissipation d'énergie lors de la déformation du système :

$$k = \kappa + i\beta . \quad (3)$$

### 2.2 Caractérisation de la rhéologie interfaciale

#### 2.2.1 Saut de quantité de mouvement et relation de dispersion

Considérons un élément d'aire interfaciale soumis à des contraintes intrinsèques à l'interface et à des contraintes liés au mouvement du volume liquide en sous-phase. Les composantes

normale et tangentielle du terme de saut de quantité de mouvement à l'interface s'écrivent respectivement ([2], [6], [7]) :

$$iA \left( \sigma - \frac{\rho\omega^2}{k^3} + 2i\mu\frac{\omega}{k} + \frac{\rho g}{k^2} \right) + B \left( \sigma + 2i\mu\frac{\omega m}{k^2} + \frac{\rho g}{k^2} \right) = 0 , \quad (4)$$

$$A(k\varepsilon + 2i\mu\omega) - iB \left( m\varepsilon + i\mu\omega\frac{k^2 + m^2}{k^2} \right) = 0 , \quad (5)$$

avec  $\mu$  la viscosité dynamique de l'eau,  $\sigma$  la tension de surface et  $\varepsilon = \varepsilon_d + i\omega\eta_d$ , le module d'élasticité interfacial où  $\varepsilon_d$  et  $\eta_d$  sont respectivement l'élasticité dilatationnelle et la viscosité dilatationnelle. L'inverse du nombre  $m$ , qui a pour expression :

$$m = \sqrt{k^2 + \frac{i\omega\rho}{\mu}} \quad \text{et} \quad \Re(m) > 0 , \quad (6)$$

caractérise la profondeur de pénétration en sous-phase de la partie rotationnel de la perturbation, alors que l'inverse du nombre  $k$  caractérise la profondeur de pénétration en sous-phase de la partie potentiel de la perturbation.

La relation de dispersion obtenue à partir de (4) et (5) en annulant le déterminant des coefficients de  $A$  et  $B$  s'écrit finalement [2] :

$$\left( \varepsilon + i\mu\omega\frac{k+m}{k^2} \right) \left( \frac{\sigma k^2}{\omega} + i\mu(k+m) + \frac{\rho g}{\omega} - \frac{\rho\omega}{k} \right) = -\omega\mu^2 \left( 1 - \frac{m}{k} \right)^2 . \quad (7)$$

### 2.2.2 Tension de surface et module d'élasticité

Notons  $s_a$  et  $s_b$  les nombres complexes définis par :

$$s_A = -\frac{\rho\omega^2}{k^3} + 2i\mu\frac{\omega}{k} + \frac{\rho g}{k^2}$$

$$s_B = 2i\mu\frac{\omega m}{k^2} + \frac{\rho g}{k^2} .$$

En séparant la partie réelle et la partie imaginaire de (4) et en utilisant la notation précédente on obtient :

$$B(\sigma + \Re(s_B)) - A\Im(s_A) = 0 \quad (8)$$

$$B\Im(s_B) + A(\sigma + \Re(s_A)) = 0 . \quad (9)$$

Le système formé par (8) et (9) admet une solution non-triviale si le déterminant des coefficients de  $A$  et  $B$  est nul. En utilisant la notation suivante :

$$x_X \equiv \Re(s_X) \quad \text{and} \quad y_X \equiv \Im(s_X) ,$$

le déterminant s'écrit :

$$\sigma^2 + (x_B + x_A)\sigma + x_Ax_B + y_Ay_B = 0 . \quad (10)$$

De cette équation on isole la racine physique (positive) qui n'est autre que la tension de surface :

$$\sigma = \frac{1}{2} \left( \sqrt{(x_B - x_A)^2 - 4y_By_A} - x_B - x_A \right) . \quad (11)$$

Ainsi, une fois  $k$  et  $\omega$  connus expérimentalement, on peut calculer  $\sigma$  que l'on substitue ensuite par sa valeur dans (7) afin d'obtenir le module d'élasticité  $\varepsilon$  :

$$\varepsilon = \frac{\omega^2 \mu^2 (k - m)^2}{\rho \omega^2 k - i \mu k^2 (k + m) - \rho g k^2 - \sigma k^4} - i \mu \omega \frac{k + m}{k^2} . \quad (12)$$

### 2.3 Détermination du nombre d'onde complexe

Notre méthodologie repose sur la même technique optique que celle proposée par Saylor *et al* [5] : la mesure par réfractométrie de la pente de l'interface déformée en fonction du rayon. Cependant, grâce à l'instrumentation développée dans cette étude, nos mesures, réalisées sur un diamètre complet de l'interface, sont beaucoup plus sensibles que les mesures de Saylor *et al* [5] réalisées sur une courte distance trop éloignée du centre. La forme de l'interface est donc déterminée avec une précision accrue puisqu'on mesure notamment sa pente dans un proche voisinage du centre, là où l'amplitude est maximale et les perturbations minimales.

L'enveloppe de la pente de l'interface vérifie :

$$\left| \frac{\partial \zeta}{\partial r} \right|^2 = |\zeta_0 k J_1(\kappa r)|^2 , \quad (13)$$

Les ondes capillaires considérées sont quasi-stationnaires. La partie imaginaire  $\beta$  du nombre d'onde complexe  $k$  est donc telle que le nombre adimensionnel  $\beta r_e$  est très faible devant 1. On peut alors obtenir une expression approchée de (13) à l'aide d'un développement de Taylor :

$$\left| \frac{\partial \zeta}{\partial r} \right|^2 \simeq \zeta_0^2 \kappa^2 (J_1^2(\kappa r) + \beta^2 r^2 J_0^2(\kappa r)) . \quad (14)$$

L'enveloppe de la pente de l'interface mesurée expérimentalement est ensuite utilisée pour déterminer les paramètres  $\kappa$  et  $\beta$ . En considérant que les positions radiales des minima locaux de l'enveloppe multipliées par  $\kappa$  soient égales aux racines de  $J_1$  (fonction de Bessel d'ordre 1), nous pouvons dans un premier temps déterminer la valeur de  $\kappa$  qui permet d'aboutir à l'ajustement optimal entre les minima expérimentaux et les racines de  $J_1$  par une méthode des moindres carrés. Une fois  $\kappa$  évaluées, les grandeurs  $\zeta_0$  et  $\beta$  sont alors calculées en utilisant à nouveau une minimisation aux moindres carrés pour ajuster les points expérimentaux à ceux obtenus avec la relation théorique (14). Une fois ce premier triplet de solution  $\kappa$ ,  $\beta$ , et  $\zeta_0$  obtenu, on utilise une technique itérative afin de minimiser l'écart entre les points expérimentaux et les points calculés à partir de l'expression non approchée (13). A l'issue de cette étape d'identification la moyenne des erreurs entre les points expérimentaux et les points théoriques est inférieure à 3%.

## 3 Dispositif expérimental

Les expériences sont réalisées dans un réservoir cylindrique de verre de diamètre interne 5 cm, monté au centre d'un disque de plexiglass supporté par huit ressorts répartis à sa périphérie. Trois dispositifs électromagnétiques sont disposés symétriquement autour du réservoir de façon à pouvoir l'agiter verticalement. Ces dispositifs électromagnétiques sont reliés à trois amplificateurs indépendants alimentés par un même signal sinusoïdal. Le gain de chaque amplificateur peut être ajusté de telle sorte que le réservoir subisse une excitation exactement axisymétrique. La position de l'ensemble du dispositif est réglée afin que l'horizontalité de la ligne triple soit

ajustée à 0,05% près. Les fréquences de vibration sont choisies dans une gamme rhéologique (10 - 100 Hz).

Un rayon laser HeNe initialement horizontal est renvoyé vers l'interface grâce à un miroir placé sous le réservoir. Ce miroir est monté sur un support motorisé qui permet de le déplacer selon un diamètre du réservoir, de façon à pouvoir mesurer la pente de l'interface en tout point. Une lentille, montée sur le même support mobile, permet de faire converger le laser dans le plan de l'interface afin d'accroître la résolution spatiale.

Un détecteur sensible à la position (PSD) est fixé au-dessus du réservoir et aligné suivant la direction de déplacement du miroir. Une lentille est placée entre l'interface et le PSD, à une distance égale à sa distance focale, de façon à ce que la position du point d'impact sur le PSD du rayon réfracté à l'interface, ne dépende ni de la position radiale du rayon incident ni de l'amplitude de la déformée interfaciale, mais seulement de la pente de l'interface.

Un programme LABVIEW permet de contrôler simultanément le déplacement du miroir et l'acquisition du signal délivré par le PSD.

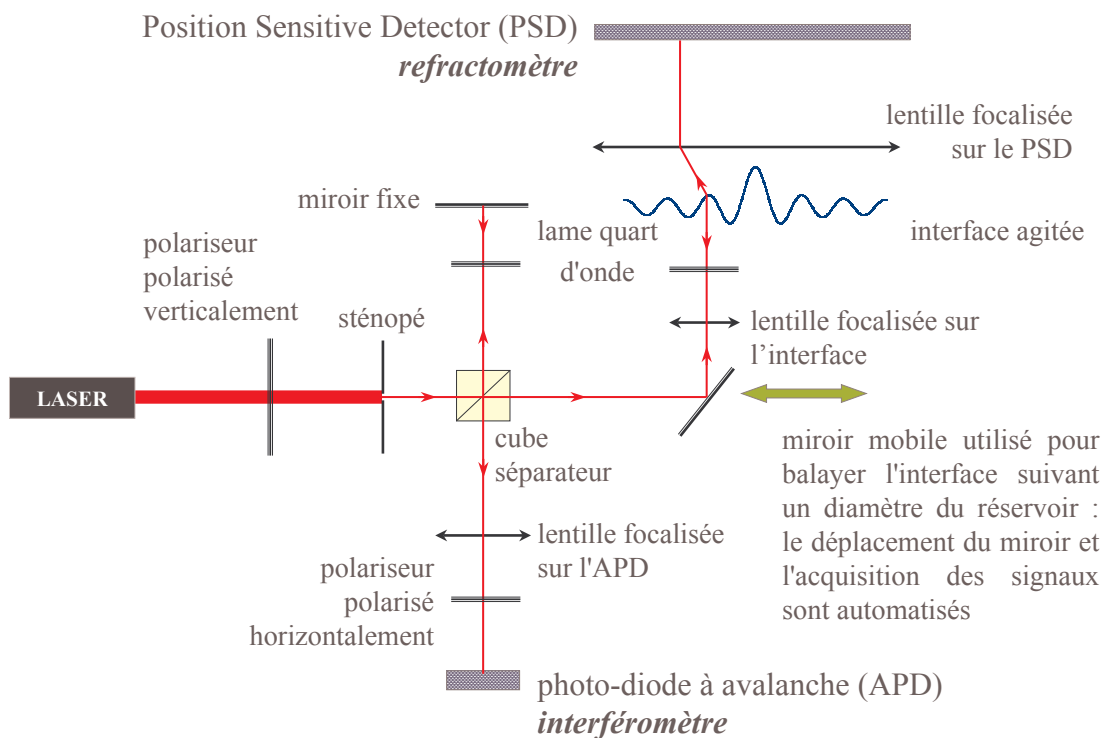


FIG. 1 – Schéma du dispositif expérimental

#### 4 Validation de la méthodologie

Afin d'illustrer la technique proposée, on s'intéresse à une interface progressivement contaminée avec de l'acide palmitique ( $C_{15}H_{31}-COOH$ ). La forme de l'interface, agitée à une fréquence arbitraire de 32 Hz, est caractérisée lors de l'augmentation de la concentration interfaciale  $\Gamma$  en acide. La température est maintenue à 23°C. Comme le montre la figure 2, l'amplitude des ondes tend à diminuer avec l'ajout d'acide alors que la longueur d'onde et le facteur d'atténuation ont au contraire tendance à augmenter. La tension interfaciale déterminée à partir des mesures précédentes est présentée sur la figure 3.

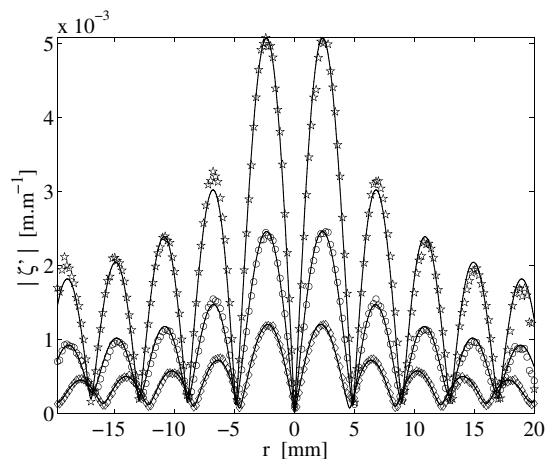


FIG. 2 – Amplitude de la pente de l’interface en fonction du rayon à 32 Hz lorsque la concentration en acide palmitique augmente.  $\star$  eau pure,  $\circ$   $\Gamma = 4.6 \mu\text{mol.m}^{-2}$ ,  $\diamond$   $\Gamma = 6.9 \mu\text{mol.m}^{-2}$ .

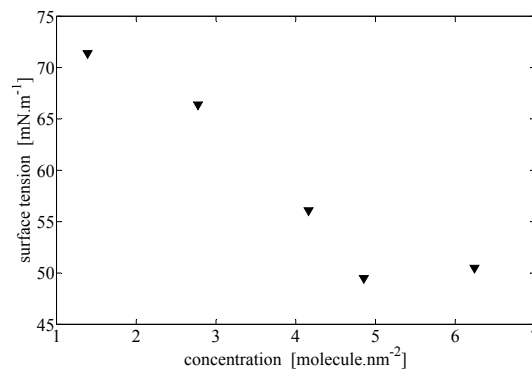


FIG. 3 – Evolution de la tension de surface en fonction de la concentration en acide palmitique.

## 5 Conclusion

Une procédure mathématique simple et novatrice, à notre connaissance, permet de déterminer le module d’élasticité  $\varepsilon$  et la tension de surface  $\sigma$  d’une interface perturbée par des ondes capillaires, à partir de mesures non intrusives de réfractométrie. Cette méthodologie résulte d’améliorations notables apportées à une technique envisagée par Saylor *et al* [5]. Une campagne de mesures plus approfondie est nécessaire afin de déterminer précisément les possibilités du système expérimental, en particulier pour la détection et la caractérisation de biomolécules.

## Références

- [1] J. Berthier and L. Davoust, 2002. Brevet CEA/CNRS, PCT Intl. Appl. No WO03/00920, French Patent No. EN0203690.
- [2] E.H. Lucassen-Reynders and J. Lucassen. Properties of capillary waves. *Adv. Colloid Interface Sci.*, 2 :347, 1969.
- [3] D. Thomas, L. Blum, and A. Girard-Egrot. Development of a fluid functionalized lipidic matrix applied to direct in situ polynucleotide detection. *Biosensors and Bioelectronics*, 20 :1539–1548, 2005.
- [4] C. Barentin, C. Ybert, Di Meglio J-M., and Joanny J-F. Surface shear viscosity of gibbs and langmuir monolayers. *J. Fluid. Mech.*, 397 :331–349, 1999.
- [5] J.R. Saylor, A.J. Szeri, and G.P. Fouks. Measurement of surfactant properties using a circular capillary wave field. *Exp. Fluids*, 29 :509, 2000.
- [6] Bock E. J. On ripple dynamics. *J. Colloid Interface Sci*, 1147 :422–432, 1991.
- [7] C. C. Mei. Bessel functions and circular boundaries. In *Mathematical analysis in engineering*, chapter 8, pages 165–201. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom, 1984.