



**HAL**  
open science

## Effets de la double couche électrique sur un écoulement de Poiseuille

Christine Lattes, Stéphane Colin, Sandrine Geoffroy, Lucien Baldas

► **To cite this version:**

Christine Lattes, Stéphane Colin, Sandrine Geoffroy, Lucien Baldas. Effets de la double couche électrique sur un écoulement de Poiseuille. *Microfluidique* 2004, Dec 2004, Toulouse, France. hal-02423341

**HAL Id: hal-02423341**

**<https://hal.science/hal-02423341v1>**

Submitted on 24 Dec 2019

**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.

# Effets de la double couche électrique sur un écoulement de Poiseuille

Christine LATTES\*, Stéphane COLIN, Sandrine GEOFFROY et Lucien BALDAS

Laboratoire de Génie Mécanique de Toulouse,  
INSAT, 135 avenue de Rangueil, 31077 Toulouse cedex 4  
\* christine.lattes@insa-toulouse.fr

## RESUME

*Le contact d'un liquide avec une paroi donne naissance dans la plupart des cas à une double couche électrique (DCE) dont les effets sont négligeables à une échelle macroscopique mais ne le sont plus à une échelle microscopique. Cette DCE peut être exploitée pour mettre le liquide en mouvement (électro-osmose) ou pour déplacer en son sein des particules solides (électrophorèse) par application d'un champ électrique. En l'absence d'un tel champ électrique et dans le cas d'un écoulement généré par gradient de pression, la DCE joue également un rôle, qui n'est plus moteur, mais dont les conséquences apparaissent multiples.*

*La littérature sur ce sujet s'est particulièrement étoffée au cours des dernières années, avec plus d'une centaine de publications traitant des effets de la DCE sur les micro-écoulements de liquides générés par un gradient de pression. L'objectif de cet article est de proposer une synthèse et une analyse de cette bibliographie, montrant l'état des connaissances actuelles et les verrous scientifiques qu'il reste à forcer.*

## ABSTRACT “Effects of the electrical double layer on Poiseuille microflows”

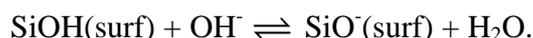
*The contact of a liquid with a solid wall generally results in an electrical double layer (EDL) which effects are negligible at macroscopic scale but not at microscopic scale. This EDL can be used to drive the liquid (electro-osmosis) or to bring solid particles within the liquid (electrophoresis) by application of an electric field. Without any electric field and in the case of a pressure driven flow, the EDL plays an important role with several consequences on the flow.*

*The objective of this paper is to propose a synthesis and an analysis of the current knowledge about the effects of EDL on Poiseuille microflows. The remaining issues are also examined.*

## I. SCHEMATISATION DE LA DCE

Quand un liquide polaire est mis en contact avec une paroi solide, celle-ci acquiert la plupart du temps une charge électrique. La charge de la paroi dépend notamment de l'ionisation donc du pH de la solution, et de la faculté d'adsorption à la paroi ou de dissolution dans le liquide des ions à l'interface paroi-liquide [1].

Par exemple, dans le cas du silicium en contact avec de l'eau, la dissociation des molécules au niveau de la paroi va produire une surface chargée négativement, suite à la réaction :



Il en résulte une modification locale de la concentration ionique de la solution. La zone affectée par cette redistribution des charges dans le liquide est appelée la couche électrique.

### I.1 Approche classique : Modèle de Stern

Le modèle de Stern (Figure 1) vise à conceptualiser cette couche électrique. Il est utilisé dans la plupart des études et présente en fait cette couche comme une double couche électrique (DCE) comportant une fine couche compacte (dite de Stern) composée d'ions adsorbés à la

paroi et alignés suivant le plan de Stern, associée à une couche diffuse (dite de Gouy-Chapmann) dans laquelle les ions sont mobiles. Les charges de surface sont équilibrées par les charges adsorbées et par les charges de la couche diffuse, réalisant ainsi l'électroneutralité de l'ensemble en regard d'un élément de surface donné.

Le plan séparant les deux couches est appelé le plan de cisaillement. Le potentiel au niveau de ce plan, caractéristique de la DCE, est le potentiel zêta  $\xi$ , encore appelé potentiel électrochimique ou électrocinétique. La répartition des ions dans la solution crée un champ électrique transversal dont l'effet s'atténue lorsqu'on s'éloigne de la paroi (Figure 2).

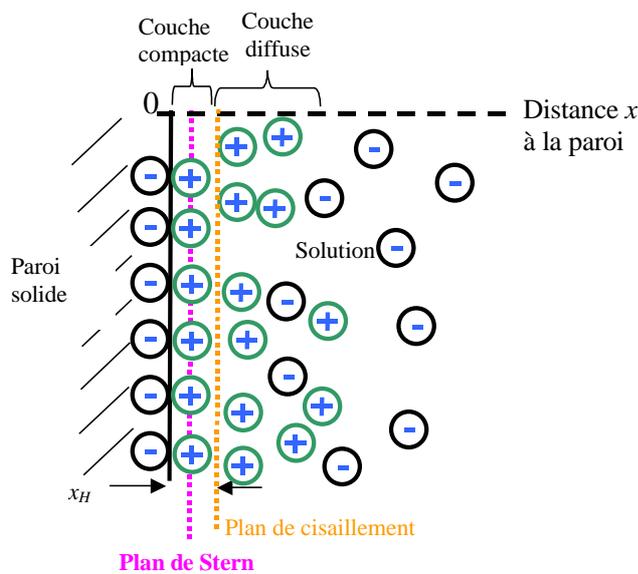


Figure 1 : Modèle de la double couche d'après Stern

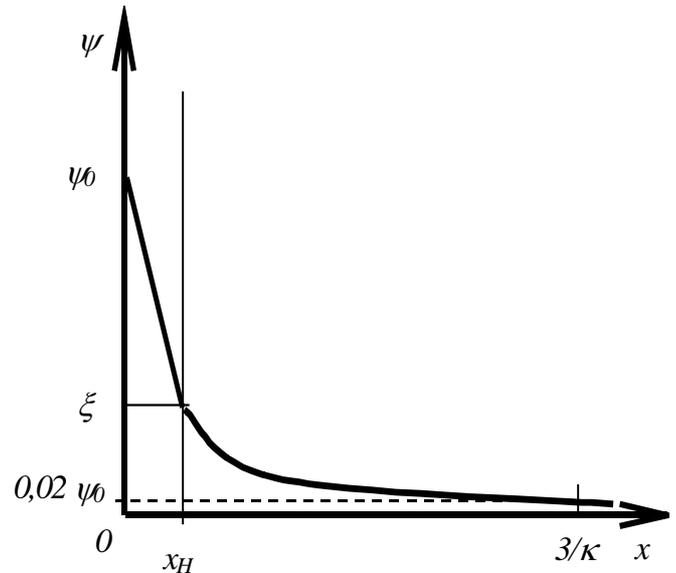


Figure 2 : Décroissance du potentiel  $\psi$  dans la double couche d'après Stern

Le potentiel électrique  $\psi$  est relié à la densité de charge  $\rho_E$  dans la solution par l'équation de Poisson [2-5]

$$\nabla^2 \psi = \frac{\rho_E}{\varepsilon \varepsilon_0}, \tag{I-1}$$

où  $\varepsilon$  est la permittivité relative du milieu et  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide.

La concentration en ions positifs  $n^+$  ou négatifs  $n^-$  est donnée par l'équation de distribution de Boltzmann

$$n^- = n_0 e^{\frac{ze\psi}{k_b T}} \text{ et } n^+ = n_0 e^{-\frac{ze\psi}{k_b T}}, \tag{I-2}$$

où  $n_0$  est la concentration initiale,  $z$  la valence des ions,  $e$  la charge d'un électron,  $k_b$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température. Pour une solution symétrique (constituée d'ions de même valence), la densité locale de charges dans le fluide est alors

$$\rho_E = (n^+ - n^-)ze = -2n_0 ze \sinh\left(\frac{ze\psi}{k_b T}\right). \tag{I-3}$$

La combinaison des équations (I-1) et (I-3) conduit à l'équation de Poisson-Boltzmann

$$\nabla^2 \psi = \frac{2ze n_0}{\varepsilon \varepsilon_0} \sinh\left(\frac{ze\psi}{k_b T}\right), \tag{I-4}$$

qui sous forme adimensionnelle s'écrit [6, 7]

$$\nabla^2 \bar{\psi} = \kappa^2 \sinh \bar{\psi}, \quad (\text{I-5})$$

équation dans laquelle  $\bar{\psi} = \frac{ze\psi}{k_b T}$  et  $\kappa = \sqrt{\frac{2n_0 e^2 z^2}{\varepsilon \varepsilon_0 k_b T}}$  est appelé paramètre de Debye-Hückel [7].

L'épaisseur  $\delta = \kappa^{-1}$  de la DCE est caractéristique de l'épaisseur de la couche fluide à la paroi dans laquelle la variation du potentiel électrique est significative. Pour une distance à la paroi égale à trois fois cette épaisseur (Figure 2), le potentiel a diminué de 98% par rapport à sa valeur à la surface [8] :

$$\psi(x = 3/\kappa) = \psi_0 - 0,98\psi_0. \quad (\text{I-6})$$

Selon les propriétés du liquide, l'épaisseur varie de quelques nanomètres à un micromètre environ [9].

## I.2 Résolution de l'équation de Poisson-Boltzmann

Différentes méthodes de résolution de l'équation (I-5) sont proposées dans la littérature. La première et la plus courante utilise l'approximation de Debye-Hückel. Elle consiste en la linéarisation de l'équation de Poisson-Boltzmann, sous la forme

$$\nabla^2 \bar{\psi} = \kappa^2 \bar{\psi}. \quad (\text{I-7})$$

La plupart des auteurs considèrent qu'elle n'est valable que lorsque l'énergie électrique est inférieure à l'énergie thermique, soit pour  $|ze\psi| < |k_b T|$ . A température ambiante et pour des solutions monovalentes, cela ne la rend applicable que dans le cas de faibles potentiels à la surface, inférieurs à 25 mV. D'après la figure 3, tant que  $\bar{\psi} < 0,5$  (soit  $\psi < 12$  mV), l'erreur commise est inférieure à 5% alors que pour  $\bar{\psi} = 1$  (soit  $\psi = 25$  mV) elle est de 15%. Dans le cas d'un canal cylindrique de révolution de rayon  $a$ , la solution de l'équation (I-7) est [10, 11]

$$\psi(r) = \psi_0 \frac{I_0(\kappa r)}{I_0(\kappa a)}, \quad (\text{I-8})$$

où  $I_0$  est la fonction de Bessel d'ordre zéro de première espèce, pour des conditions limites  $\psi(a) = \psi_0$  et  $d\psi/dr|_{r=0} = 0$ . Dans le cas d'un écoulement entre deux plaques planes parallèles, l'expression du potentiel est [6, 7, 12, 13]

$$\psi = \psi_0 e^{-\kappa x}, \quad (\text{I-9})$$

pour des conditions limites  $\psi(a) = \psi_0$  et  $\psi(0) = 0$ , qui suppose les plaques suffisamment éloignées l'une de l'autre.

La majorité des auteurs [7, 11] utilisent  $\xi$  à la place de  $\psi_0$  car le potentiel de surface, qui dépend peu de la nature et de la concentration des ions dans le fluide, est très difficile à déterminer. Le potentiel zêta dépend quant à lui de la concentration ionique et sa détermination peut être réalisée de manière empirique à partir de données électrocinétiques et de l'équation d'Helmholtz-Smoluchowski [8, 14]. En pratique, la solution de Debye-Hückel n'est souvent qu'approchée car le potentiel à la paroi s'avère fréquemment supérieur à la valeur limite. Cependant, certains auteurs [12, 15] utilisent des résultats trouvés grâce à cette approximation et appliquent leurs solutions à des potentiels  $\xi$  supérieurs à 25 mV.

D'autres méthodes permettent de tenir compte de potentiels plus élevés. C'est le cas du modèle proposé par Lévine [11] qui décompose en deux parties la résolution des équations de

Poisson-Boltzmann. Pour  $\bar{\psi} < 1$ , l'approximation de Debye-Huckel reste valable tandis que pour  $\bar{\psi} > 1$ , la fonction  $\sinh \bar{\psi}$  est approchée par  $e^{\bar{\psi}}/2$  (Figure 3).

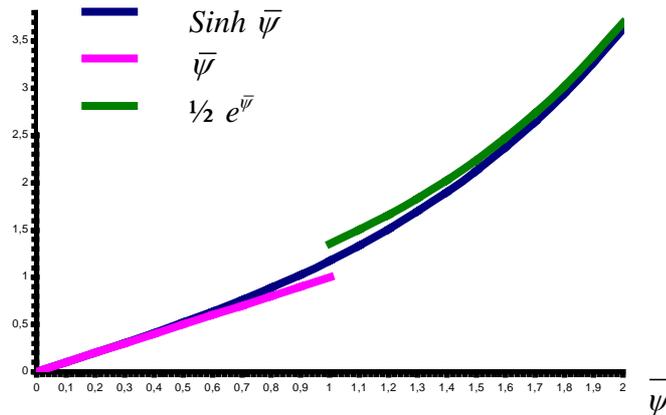


Figure 3: Approximation de la fonction  $\sinh$  d'après Lévine

La quantification des erreurs introduites par les approximations de Debye-Hückel ou de Lévine n'est pas clairement précisée dans la littérature. Nous sommes actuellement en train de l'étudier. Pour éviter ces approximations et pouvoir aborder des problèmes relatifs à des géométries plus complexes (canaux rectangulaires par exemple), d'autres auteurs utilisent des méthodes numériques pour traiter de façon complète les équations hydrodynamiques et l'équation de Poisson-Boltzmann. Lorsque les équations régissant l'écoulement sont les équations de Navier-Stokes, les méthodes employées sont classiquement les différences finies [3, 9, 16, 17] ou les volumes finis [18]. On rencontre également des approches de type Boltzmann en réseau [19].

### I.3 Autres modèles

Le modèle de Stern (Figure 1) ne permet pas toujours de rendre compte de manière satisfaisante de l'influence de la nature chimique des anions et de leur interaction avec la paroi. Il présente des limitations à la proximité de la paroi [8]. Si on envisage la DCE comme un condensateur, il ne rend pas compte de façon précise de la variation de sa capacité en fonction du potentiel (Figure 4).

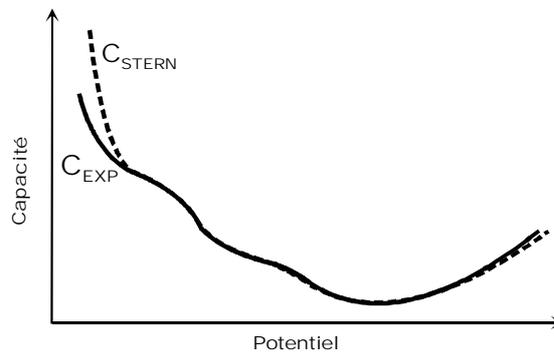


Figure 4 : Comparaison entre la capacité calculée à partir du modèle de Stern et la capacité mesurée par Grahame[20]

Ainsi d'autres représentations plus précises existent qui tiennent compte de phénomènes particuliers au niveau du contact liquide/paroi. Le modèle de Grahame (Figure 5) tient compte de l'adsorption spécifique d'ions à la surface du solide. Ces ions sont déshydratés. Ils présentent une interaction forte avec la paroi alors que les ions hydratés ne sont retenus que par

des forces électrostatiques. La couche compacte de ce modèle se décompose alors en deux parties : le plan interne d’Helmholtz (PIH) qui passe par le centre des ions adsorbés spécifiquement et le plan externe d’Helmholtz (PEH) qui passe au centre des ions non adsorbés spécifiquement.

Un autre modèle plus récent, proposé par Bockris et al. [21] tient compte de l’interaction entre le solide et les dipôles en solution (Figure 6). Ce modèle tient compte des molécules d’eau et des ions négatifs déshydratés adsorbés par la surface ainsi que des ions positifs hydratés incapables d’atteindre la surface à cause des molécules d’eau qu’ils retiennent.

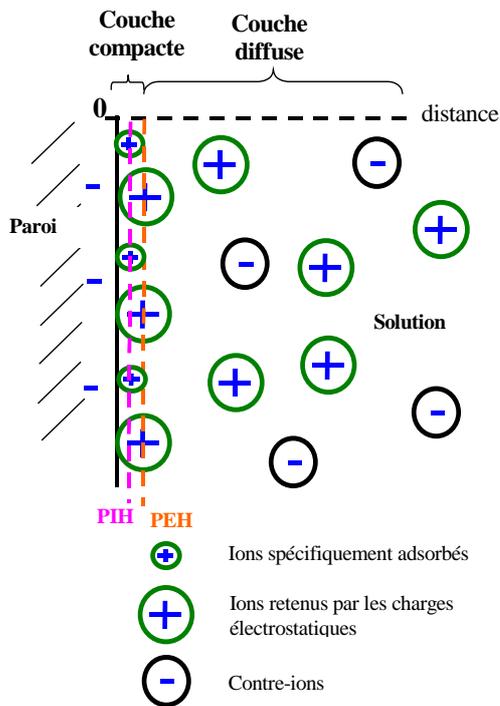


Figure 5 : Modèle de la double couche selon Grahame

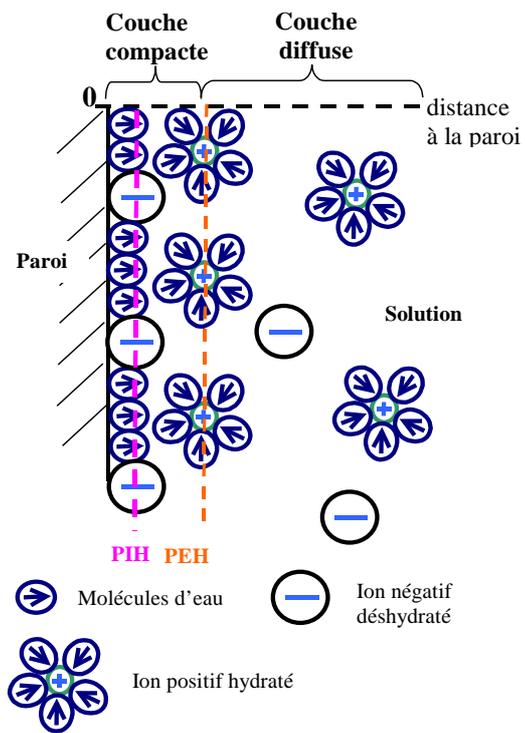


Figure 6 : Modèle de la double couche selon Bockris Denavathan Müller [21]

L'équation de Poisson-Boltzmann présente également des faiblesses :

- d'une part parce qu'elle néglige les interactions entre les ions dues à la taille et aux forces de Coulomb,
- d'autre part parce qu'elle suppose que la concentration en ions tend vers une même valeur au milieu du canal (Figure 7). Pour des raisons de conservation globale des charges, il apparaît pourtant au centre du canal une charge non nulle, qui équilibre le surplus d'ions et le déficit de contre-ions à proximité de la paroi (Figure 8) [22].

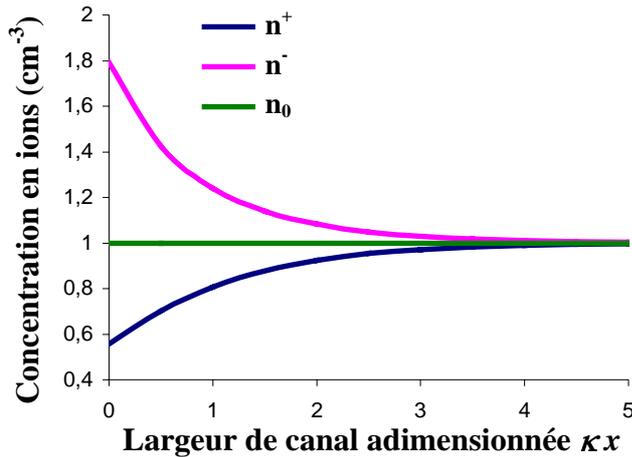


Figure 7 : Accumulation des ions positifs et répulsion des ions négatifs au voisinage d'une paroi chargée négativement d'après l'équation (I-2)

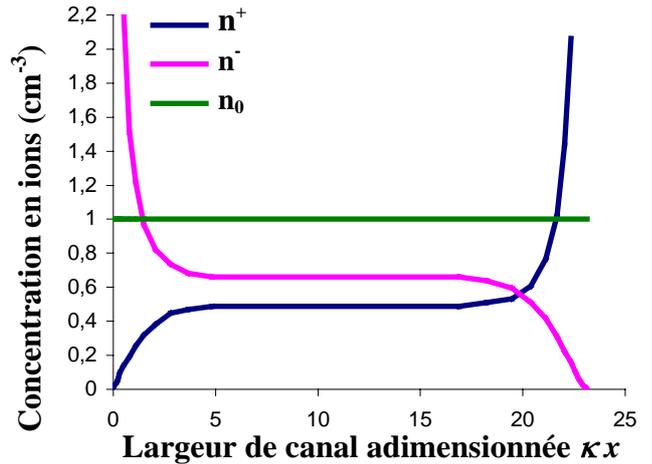


Figure 8 : Répartition des ions suivant  $Re_n$  [22]

Une amélioration peut être apportée par la prise en compte de la distribution des ions à l'aide des équations de diffusion-convection de Nernst-Planck [18] qui, en plus des effets électriques, tiennent compte de l'effet diffusif dû au gradient de concentration. La densité de charge obtenue par les équations de Nernst-Planck à l'entrée du canal est visiblement différente de celle obtenue par les équations de Boltzmann. Une fois le régime établi, les deux distributions sont comparables (Figure 9).

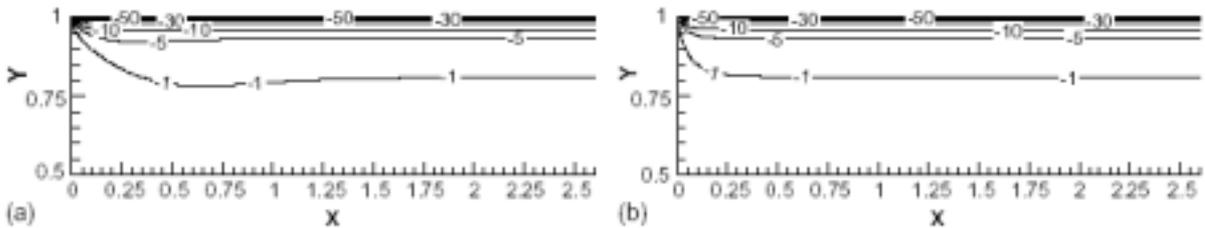


Figure 9 : Densité de charge locale adimensionnée ( $Re=0.1, \xi=100$  mV) : (a) Nernst-Planck (b) Boltzmann [18]

## II. MODELISATION D'UN ECOULEMENT DE POISEUILLE EN PRESENCE DE DCE

Lorsque l'écoulement est généré par un gradient de pression, la couche diffuse, qui n'est pas électriquement neutre, se trouve entraînée par l'écoulement du liquide et génère un courant dit « d'écoulement », lequel donne naissance à un courant dit « de conduction » dans la direction opposée (Figure 10).

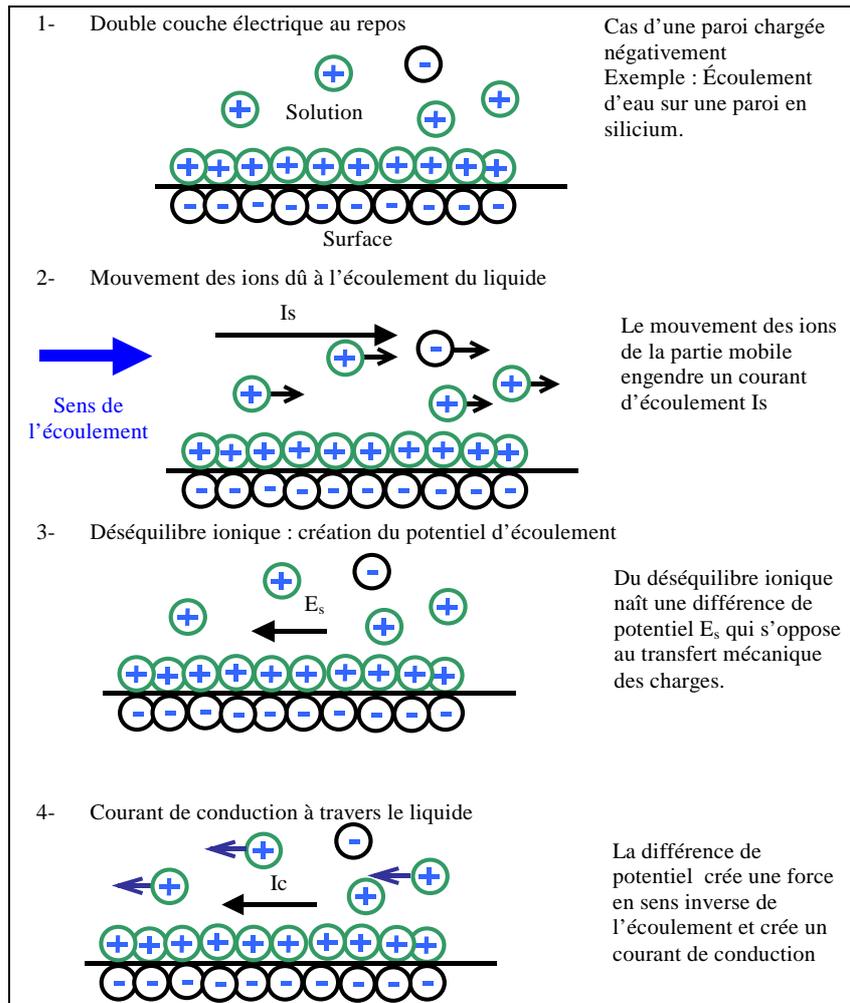


Figure 10: Description schématique du processus menant à la formation d'un potentiel d'écoulement d'après Elimelech [23]

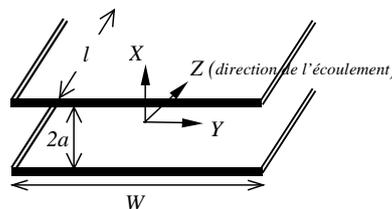


Figure 11 : Schéma d'un microcanal de longueur  $l$  limité par deux plaques planes parallèles

L'équation du mouvement s'obtient par résolution de l'équation de Navier-Stokes à laquelle s'ajoute un terme dû à la force électrique. Par exemple, dans le cas d'un écoulement entre deux plaques planes parallèles (Figure 11) généré par un gradient de pression cette équation devient [12]

$$\mu \frac{\partial^2 U_z}{\partial X^2} - \frac{dP}{dZ} + E_z \rho_E(x) = 0, \quad (\text{II-1})$$

où  $E_z \rho_E(x)$  est la force électrique,  $E_s = E_z l$  étant le potentiel d'écoulement et  $\mu$  la viscosité. En adimensionnant cette équation et en appliquant les conditions limites  $U_z(\bar{X} = \pm 1) = 0$ , on obtient l'expression analytique de la vitesse adimensionnée sous la forme :

$$U_z(\bar{X}) = U_{Poiseuille}(\bar{X}) + U_{DCE}(\bar{X}), \tag{II-2}$$

avec

$$U_{Poiseuille}(\bar{X}) = \frac{G_1}{2}(1 - \bar{X}^2) \tag{II-3}$$

et

$$U_{DCE}(\bar{X}) = -\frac{2G_2 \overline{E_s} \bar{\xi}}{\kappa^2} \left\{ 1 - \left| \frac{\sinh(\kappa \bar{X})}{\sin(\kappa)} \right| \right\} \tag{II-4}$$

où  $G_1 = \left( \frac{-a^2 dP/dZ}{\mu V_0} \right)$  et  $G_2 = \frac{\zeta n_0 z e a^2}{l \mu V_0}$ .

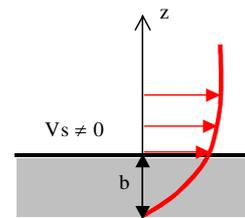
Le modèle classique peut-être amélioré de différentes manières :

**1) Prise en compte d'une condition de glissement :**

A l'échelle microscopique, le glissement du liquide sur des parois hydrophobes ne devient plus négligeable [24]. Yang étudie le couplage entre glissement et effet de la DCE sur des écoulements dans des microcanaux de section circulaire [25] ou entre des plaques planes parallèles [26]. Il modifie pour cela la condition limite habituelle en introduisant une condition de glissement au niveau de la paroi sous la forme :

$$U_z(a,t) = b \frac{\partial U_z(a,t)}{\partial x},$$

$b$  étant la longueur de glissement ou coefficient de glissement défini par le schéma ci-contre :



Quatre cas sont ainsi comparés (Figure 12) :

- 1- pas de glissement et absence d'effet électrocinétique (ligne bleu pointillée),
- 2- pas de glissement et présence d'effets électrocinétiques (ligne bleu pleine),
- 3- glissement et absence d'effet électrocinétique (ligne rouge pointillée),
- 4- glissement et présence d'effets électrocinétiques (ligne rouge pleine).

Dans le cas d'un écoulement entre plaques planes parallèles, les différents profils de vitesses obtenus sont les suivants :

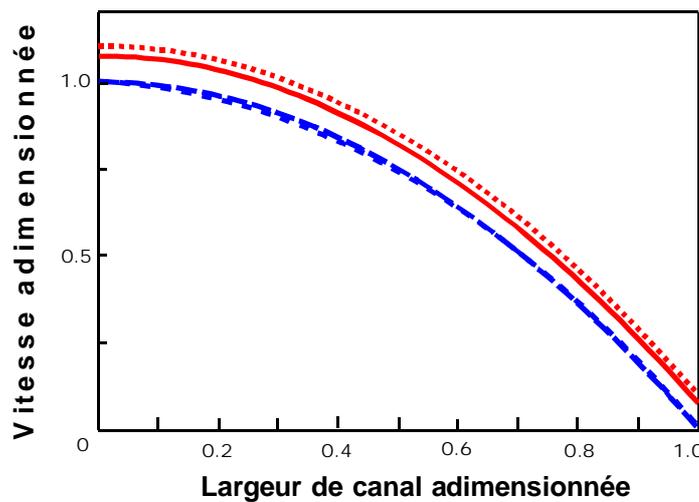
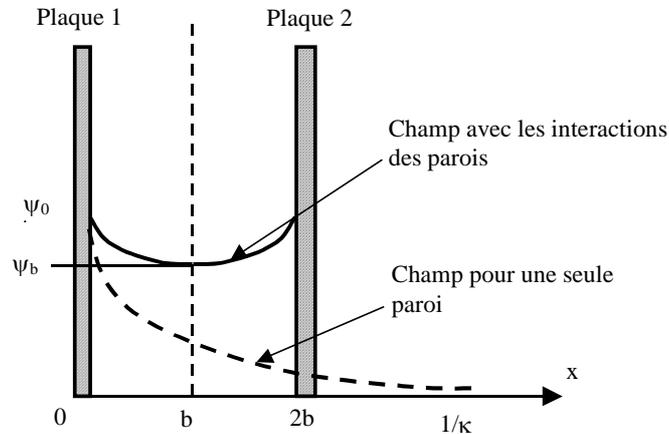


Figure 12 : Profils de vitesse d'après Yang pour  $\Delta P = 10^6$  Pa/m,  $E_z = 0,5 \cdot 10^5$  V/m,  $b = 1$  et  $a = 20 \mu\text{m}$

Ces résultats mettent en évidence que dans certaines configurations, l'effet de la DCE sur le profil de vitesse, négligeable en l'absence de glissement, ne l'est plus en présence d'un glissement à la paroi.

2) Prise en compte de l'interaction des deux champs de DCE liés aux parois en vis-à-vis [27] :



**Figure 13 : Représentation schématique de la distribution du potentiel entre deux plaques parallèles proches**

Verwey et Overbeek [28] résolvent l'équation de Poisson-Boltzmann avec une condition limite de symétrie  $d\psi/dx|_{x=b} = 0$  (Figure13). Qu et Li [27] montrent que dans ce cas, l'équation de Poisson-Boltzmann peut conduire à des résultats erronés. En effet, si l'on applique des conditions de symétrie entre les deux plaques, la condition d'équilibre chimique dans le plan médian deviennent :  $dn_i/dx = 0$ . D'après sa définition, l'équation de Boltzmann devient alors inapplicable dans une telle géométrie puisqu'elle est issue de l'intégration de [8, 27]

$$\frac{1}{n_i} \frac{dn_i}{dx} = -\frac{ze}{k_b T} \frac{d\psi}{dx}, \quad (\text{II-5})$$

entre le point ( $x = \infty$ ,  $\psi = 0$  et  $n_i = n_i^0$ ) et un point de la DCE. La modification que proposent Qu et Li consiste à traiter séparément les équations d'équilibre chimique pour les cations et les anions, dont la distribution à l'intérieur du canal dépend de leur concentration au niveau du plan médian. L'expression de chacune des concentrations ioniques est ensuite utilisé dans l'équation de Poisson. Cette méthode n'est applicable que pour de faible potentiels car elle utilise l'approximation de Debye-Huckel. Le modèle apporte quelques changements au niveau de la répartition des ions lorsque la distance entre les plaques planes est du même ordre de grandeur que l'épaisseur de la DCE. Il n'a à notre connaissance pas encore été confronté à l'expérience.

D'après l'équation (II-4), il est nécessaire de connaître le potentiel d'écoulement  $E_s$  pour résoudre le problème. Lorsque le courant de conduction est égal au courant d'écoulement, un état établi est alors atteint et le potentiel d'écoulement peut être mesuré ou calculé.

$$I_s + I_c = 0 \quad (\text{II-6})$$

avec par définition

$$I_s = \iint_{\text{section}} \vec{j} \cdot d\vec{S} \quad (\text{II-7})$$

où  $\vec{j}$  est le vecteur densité du courant. Ceci peut également s'écrire [7, 8]

$$I_s = \iiint_{\text{volume}} U_z \rho_E dV. \quad (\text{II-8})$$

Pour exprimer  $I_s$  en fonction du potentiel zêta, Hunter suppose que seule la valeur de densité de charge à proximité de la paroi a une importance sur la détermination de  $I_s$ . Après intégration et adimensionnalisation, l'expression du courant d'écoulement devient [7]

$$\bar{I}_s = -\frac{2G_1 \bar{\xi} \beta_1}{\kappa^2} + 4G_2 \bar{E}_s \beta_2 \left( \frac{\bar{\xi}}{\kappa \sinh(\kappa)} \right)^2, \quad (\text{II-9})$$

où  $\beta_1 = 1 - \frac{\cosh(\kappa) - 1}{\kappa \sinh(\kappa)}$  et  $\beta_2 = \frac{\sinh(\kappa) \cosh(\kappa)}{2} + \frac{1}{2}$ . Le courant de conduction dans la direction opposée au courant d'écoulement est alors obtenu par

$$I_c = \frac{E_s A_c \lambda_T}{l}, \quad (\text{II-10})$$

avec  $\lambda_T = \lambda_b + \lambda_s P_s / l$ ,  $\lambda_b$  étant la conductivité électrique du liquide et  $\lambda_s$  la conductance de la paroi. Sous forme adimensionnelle, on obtient

$$\bar{I}_c = \frac{\bar{I}_c}{\zeta \lambda_T a} = \frac{\bar{E}_s \bar{A}_c}{(l/a)}. \quad (\text{II-11})$$

Par combinaison des équations (II-6), (II-9) et (II-11), on obtient l'expression du potentiel d'écoulement

$$\bar{E}_s = \frac{2G_1 G_3 \bar{\xi} \beta_1}{\kappa^2 + 4\beta_2 G_2 G_3 [\bar{\xi} / \sinh(\kappa)]^2}, \quad (\text{II-12})$$

avec  $G_3 = \frac{V_0 n_0 z e l}{\xi \lambda_T}$ .

### III. PRINCIPAUX EFFETS DE LA DCE SUR LES ECOULEMENTS

#### III.1 Effets hydrodynamiques

Bien qu'il s'agisse des effets les mieux identifiés, ils ne sont en général pas clairement expliqués dans la littérature. Les ions présents dans la couche mobile diffuse subissent une force qui a pour effet de les freiner et de ralentir l'écoulement dans cette couche proche de la paroi. Pour un écoulement de Poiseuille dans un canal de diamètre hydraulique  $d$ , les effets de la DCE apparaissent proportionnels à  $(\delta/d)^4$  tant que l'épaisseur  $\delta$  de la DCE reste petite devant  $d$  [29]. Ainsi, bien que la DCE soit également présente dans les macro-écoulements, elle ne joue un rôle hydrodynamique significatif que dans des conduites de très petites dimensions.

La conséquence de cet effet est que le débit résultant dans la conduite est plus faible que dans le cas d'un simple écoulement de Poiseuille [7, 29] (Figure 14). Pour un nombre de Reynolds constant (soit une vitesse débitante constante), Chen [18] trouve que la vitesse est réduite au centre et augmentée à la proximité de la paroi (Figure 15).

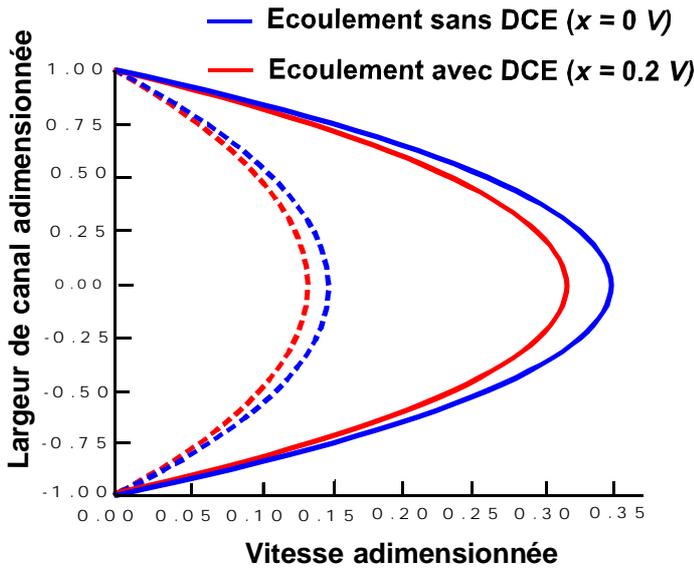


Figure 14 : Profil de vitesses selon Mala [7] pour différents gradients de pression ( $P_z = 35$  kPa lignes pleines,  $P_z = 15$  kPa lignes pointillées)

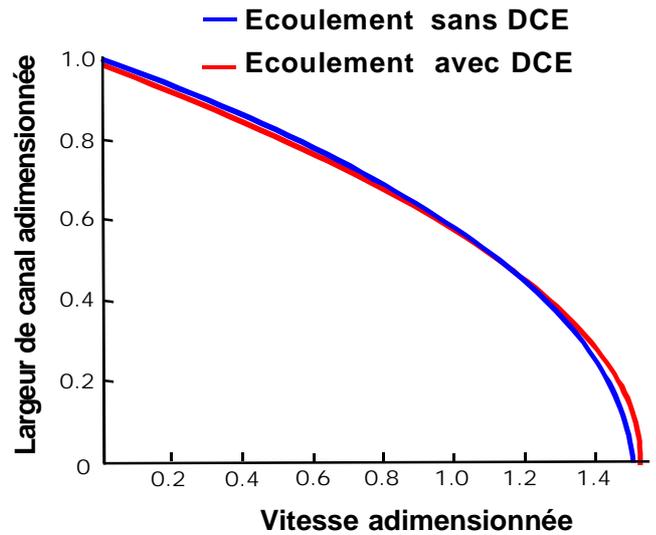


Figure 15 : Profil de vitesses selon Chen [18] à nombre de Reynolds constant

Les principales différences entre les études résident dans la manière de traiter la distribution des ions ainsi que dans la méthode de résolution des équations, l'écoulement étant régi dans tous les cas par l'équation de Navier-Stokes à laquelle s'ajoute un terme lié à la force électrique. Mala utilise une méthode « classique » de résolution en employant l'approximation de Debye-Hückel (Figure 14) mais calcule les profils de vitesses pour des valeurs de potentiel supérieures à celle imposées par l'utilisation de cette approximation. Chen résout numériquement le couplage des équations de Poisson, Nernst-Planck et Navier-Stokes par la méthode des volumes finis (Figure 15) et étudie les caractéristiques de l'écoulement à l'entrée et le long du canal.

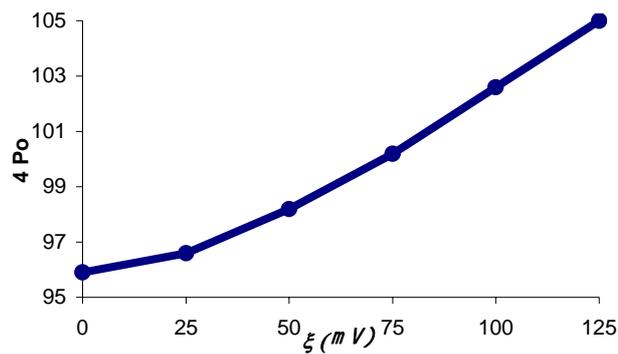


Figure 16 : Effet du potentiel zêta sur le nombre de Poiseuille ( $Re = 0,1$ )

Chen constate une augmentation du nombre de Poiseuille en fonction du potentiel zêta qui signifie que pour avoir un débit identique à celui sans DCE ( $\xi = 0$  mV,  $Po = 24$ ), le gradient de pression à appliquer à l'écoulement doit être plus grand (Figure 16).

Ren propose une modélisation de la distribution des ions plus réaliste (Figure 8). On considère classiquement que le courant d'écoulement dépend uniquement des charges proches de la paroi. Ren considère deux courants d'écoulement : l'un dû au mouvement des ions

proches de la paroi et l'autre dû à celui des ions au centre du canal, ce dernier pouvant être supérieur au premier car la vitesse est plus grande au centre du canal qu'au niveau des parois. Le potentiel d'écoulement engendré peut alors être supérieur à celui établi dans la méthode classique. Comme il s'oppose à l'écoulement, la vitesse au centre du canal s'en trouve fortement réduite (Figure 17).

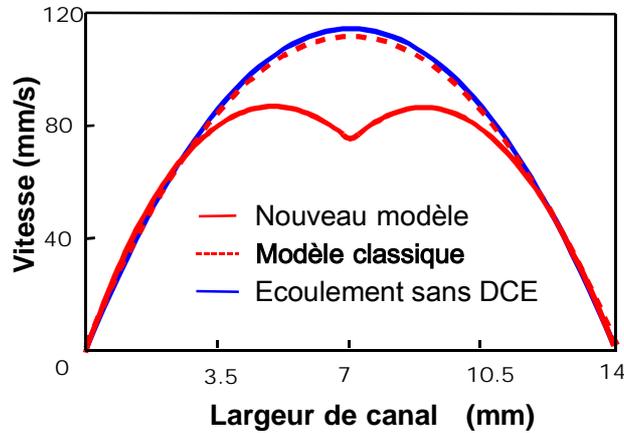


Figure 17 : Profil de vitesse selon Ren [22] ( $P_z=45$  MPa/m et  $2a=14.1$  μm)

### III.2 Effet déstabilisant

Plusieurs auteurs ont constaté expérimentalement une baisse significative de la valeur du nombre de Reynolds de transition lorsqu'on diminue fortement le diamètre hydraulique des conduites. Pour Mala [30] le nombre de Reynolds à la transition se situerait entre 500 et 1500, pour Peng [31] entre 200 et 300. D'autres auteurs [32] ne voient aucun changement par rapport à un écoulement macroscopique et trouvent un nombre de Reynolds de transition compris entre 1800 et 2000.

Tardu [29, 33, 34] montre que la DCE peut introduire un effet déstabilisant dû à la présence d'un point d'inflexion dans le profil de vitesse à proximité immédiate de la paroi. Par une analyse de la stabilité linéaire [33, 34], il montre que sous l'effet de la DCE, le nombre de Reynolds critique est diminué d'un facteur 2 entre un écoulement en présence de DCE ( $\xi=80$ mV et  $\kappa=41$ ) par rapport à un écoulement macroscopique ( $\xi=80$ mV, soit  $\kappa=\infty$ ) mais que cet effet décroît rapidement lorsque la taille du canal augmente (Figure 18).

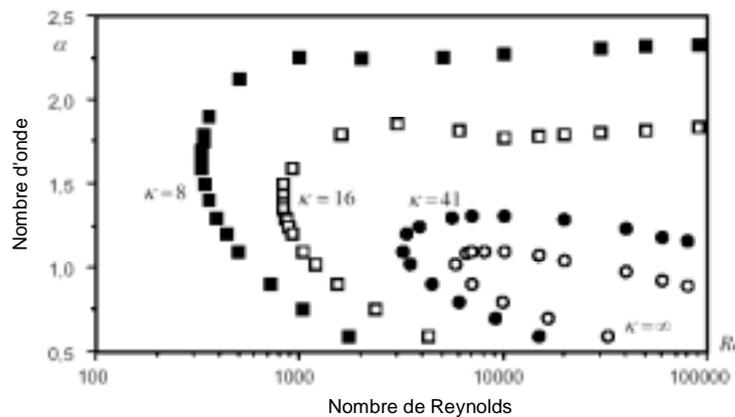


Figure 18 : Courbes neutres de stabilité d'un écoulement sous l'influence de la DCE, d'après Tardu [34]. Les cercles vides correspondent à un écoulement de Poiseuille, les autres signes correspondent à différentes épaisseurs de DCE avec  $\xi_{dim} = 2,1254$ .

Si cet effet déstabilisant était vérifié, on pourrait à terme imaginer des applications dans le domaine du contrôle actif des transferts thermiques : une modification commandée électriquement du potentiel de surface pourrait alors laminariser ou rendre turbulent l'écoulement et conditionner ainsi le transfert en paroi.

### III.3 Effets électrovisqueux

Une notion de viscosité apparente (appelée généralement deuxième effet électrovisqueux) est introduite par la plupart des auteurs [7, 8, 13, 35, 36]. Par analogie à un écoulement de Poiseuille, le débit en présence de la DCE peut ainsi se mettre sous la forme [7, 36]

$$Q_p = \frac{2 P_z a^3}{3 \mu_a}, \quad (\text{III-1})$$

où  $\mu_a$  est la viscosité apparente, que les auteurs comparent à la viscosité du liquide en fonction des paramètres de l'écoulement (pression, potentiel d'écoulement), de la DCE (paramètre de Debye-Huckel, potentiel zêta), du liquide et des dimensions du canal [7]. Il ne s'agit pas ici d'un effet électrovisqueux à proprement parler mais plutôt d'un outil de comparaison des débits d'un écoulement de Poiseuille avec ou sans présence de DCE.

Les véritables effets électrovisqueux [8] sont rarement décrits et identifiés. Le premier effet consisterait en la distorsion de la double couche par un mouvement tangentiel des ions de la couche de Stern, résultant en une augmentation de la viscosité de la solution. Il est quelquefois étudié pour les écoulements de suspensions colloïdales. Le troisième effet serait dû à une modification des interactions moléculaires dans la double couche (changement de la taille et de la forme des molécules [37]) et tiendrait compte des conséquences sur le comportement de l'écoulement.

### III.4 Dans quelle mesure ces différents effets agissent-ils sur l'écoulement ?

La nature du liquide et les caractéristiques du microcanal interviennent dans les différents effets évoqués ci-dessus. Dans la majorité des articles l'influence d'un ou de plusieurs de ces paramètres est analysée. En résumé on peut noter les points suivants.

- Influence de la taille du canal [6, 9, 35] : la réduction de la distance entre deux plaques planes parallèles augmente les effets de la DCE ; la vitesse maximale au centre du canal est plus faible que celle d'un écoulement classique.
- Influence du potentiel de surface ou du potentiel zêta [13] : plus le potentiel est fort plus la vitesse est diminuée et notamment près des parois.
- Influence de la concentration ionique du liquide [6, 10] : une diminution de la concentration implique une augmentation de l'épaisseur de la DCE. Les courbes de Burgreen et Nakache [38] dans des canaux rectangulaires et de Rice et Whitehead pour des canaux cylindriques [10] montrent que lorsque le rayon électrocinétique, produit de l'épaisseur de la DCE par le diamètre hydraulique, devient grand, les effets de la DCE sur la vitesse deviennent négligeables. Au contraire lorsque l'épaisseur de la DCE devient du même ordre de grandeur que la taille des canaux, l'écoulement est fortement perturbé.
- Influence de la composition chimique : par de nombreuses expériences, Ren [35] met en évidence non seulement que l'effet de la DCE sur l'écoulement dépend de la concentration ionique (utilisation de différentes valeurs de concentration de KCl), mais aussi que la valence et la symétrie des ions sont aussi impliquées (comparaison de liquides tels que  $\text{Al}_3\text{Cl}$  et KCl présentant des différences sur ces points).

## IV. OU EN EST L'EXPERIMENTATION ?

Il existe en fait très peu de travaux montrant expérimentalement l'influence de la DCE et permettant de discuter correctement de la validité des modèles proposés.

Seul Ren [35] a effectué un important travail expérimental essayant de montrer l'influence de la nature du liquide, de sa composition chimique ainsi que celle de la taille du canal dans les phénomènes électrocinétiques. Judy [39] effectue des mesures pour différents couples matériaux / liquides et expliquent que les écarts par rapport à un écoulement macroscopique peuvent trouver une interprétation dans les phénomènes électrocinétiques. Pfahler [40] étudie l'écoulement d'isopropanol (liquide polaire) et d'huile de silicone (liquide non polaire) dans des microcanaux de silicium et note des comportements bien distincts entre ces liquides, certainement dus à la différence de polarité de ces derniers. Li [9] commence à établir de tels essais pour différents liquides. Brutin [41] a commencé à établir un protocole visant à voir l'influence de la taille du canal et de la concentration du liquide. Anduze [42] trouve des écarts significatifs lorsque la technique d'usinage du substrat change : des écarts par rapport au modèle de Poiseuille apparaissent uniquement pour des canaux gravés par attaque chimique au KOH. Y a-t-il là des effets de DCE ?

Cependant, la disparité des quelques résultats expérimentaux [43] disponibles soulève de nombreuses interrogations. Afin d'analyser d'une façon rigoureuse les effets de la DCE des essais nécessitent d'être mis en place. Différents couples matériaux/liquide doivent être testés afin de mettre en évidence le rôle de chacun dans l'écoulement aussi bien au niveau des caractéristiques hydrodynamiques que de la transition vers la turbulence. Pour pouvoir confronter l'expérience aux modèles théoriques, il est nécessaire de pouvoir relever simultanément et précisément la pression, la température, le potentiel d'écoulement.

## V. VERROUS SCIENTIFIQUES

Sur le plan expérimental, la difficulté majeure réside dans la mesure précise de paramètres tels que le potentiel zêta, la conductivité du liquide ou même les dimensions des microcanaux qui peuvent être sources de nombreuses erreurs [42]. Les progrès de la  $\mu$ PIV devraient bientôt permettre d'accéder au champ des vitesses et de répondre ainsi à un certain nombre d'interrogations.

D'un point de vue théorique, l'analyse de différents auteurs est quelquefois biaisée. En effet, la comparaison brute de leur résultats avec un écoulement de Poiseuille classique s'avère certaines fois discutable, l'écoulement en présence de DCE n'étant en effet pas un écoulement de Poiseuille à proprement parler. La comparaison systématique des différents modèles entre eux et des quelques données expérimentales exploitables est à peine entamée.

La prise en compte d'une viscosité non uniforme reste également à étudier. Lykema et Overbeek [14] démontrent que  $d\psi/dx$  a une influence non négligeable sur la viscosité en s'appuyant sur des résultats expérimentaux antérieurs montrant une proportionnalité entre viscosité et champ électrique. Là encore, il convient de vérifier finement de quelle viscosité il s'agit.

Il apparaît de plus que la distribution des ions dans le canal reste un problème à résoudre puisque suivant les différentes méthodes et conditions d'applications les effets hydrodynamiques qui en découlent sont différents. Grâce aux progrès dans la mesure du pH [44] qui peut maintenant être effectuée avec une résolution de  $0,89 \mu\text{m} \times 0,89 \mu\text{m}$ , inférieure à l'épaisseur de la double couche, on peut espérer bientôt une meilleure compréhension de cette répartition.

## NOMENCLATURE

$\delta = \kappa^{-1}$	Épaisseur de la DCE, m	$A_c$	Aire de la section du canal, m <sup>2</sup>
$\sigma_0$	Densité de charge de surface, C m <sup>-2</sup>	$E_s$	Potential d'écoulement, V
$\varepsilon$	Permittivité relative du milieu, sans dimension	$I_s, I_c$	Courants d'écoulement et de conduction, A
$\varepsilon_0$	Permittivité du vide 8,854·10 <sup>-12</sup> C V <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup>	$P_s$	Périmètre mouillé du canal, m
$\lambda_b$	Conductivité du volume du fluide, Ω <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup>	$P_z$	Gradient de pression
$\lambda_s$	Conductance de la surface du canal, Ω <sup>-1</sup>	$T$	Température, K
$\mu$	Viscosité du liquide, N s m <sup>-2</sup>	$U_z$	Vitesse adimensionnée dans le canal
$\mu_a$	Viscosité apparente, N s m <sup>-2</sup>	$V_0$	Vitesse de référence (arbitrairement 1 m s <sup>-1</sup> )
$\xi$	Potential zêta, V	$a$	Demi-hauteur de canal, m <sup>-3</sup>
$\rho_E$	Densité de charge, C.m <sup>-3</sup>	$e$	Charge d'un électron, 1,6021·10 <sup>-19</sup> C
$\psi$	Potential électrique en un point quelconque de la DCE, V	$k_b$	Constante de Boltzmann, 1,3805·10 <sup>-23</sup> J mol <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>
$\psi_0$	Potential de surface, V	$l$	Longueur du canal, m
		$n_0$	Concentration initiale en ions, m <sup>-3</sup>
		$n^+, n^-$	Concentration en ions positifs ou négatifs, m <sup>-3</sup>

## REFERENCES

- [1] D. J. Shaw (1969), "Electrophoresis", A. Presse (Ed.), (London and New York)
- [2] D. Erickson, D. Li and W. Qu (2000), "An improved method of determining the zeta potential and surface conductance" *Journal of Colloid and Interface Science*, 232, pp. 186-197
- [3] C. Yang, D. Li and J. H. Masliyah (1998), "Modeling forced liquid convection in rectangular microchannels with electrokinetic effects" *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 41, pp. 4229-4249
- [4] K. V. Sharp, R. J. Adrian, J. G. Santiago and J. I. Molho "Liquid Flows in microchannels", Gad-el-Hak (Ed.) *The MEMS Handbook*, (CRC press)
- [5] J.-P. Delplanque (2004), "Chapitre 3 : Micro-écoulements liquides", S. Colin (Ed.) *Microfluidique*, 89-114 (Hermès)
- [6] M. S. Chun (2002), "Electrokinetic flow velocity in charged slit-like microfluidic channels with linearized Poisson-Boltzmann" *Korean J; Chem. Eng.*, 19, pp. 1 - 6
- [7] G. M. Mala, D. Q. Li and C. Werner (1997), "Flow characteristics of water through a microchannel between two parallel plates with electrokinetic effects" *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 18, pp. 489 - 496
- [8] R. J. Hunter (1981), "Zeta potential in colloid science: principles and applications", Colloid science A series of monographs (Ed.), (New York)
- [9] D. Li (2001), "Electroviscous effects on pressure-driven liquid flow in microchannels" *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 195, pp. 35 - 57
- [10] C. L. Rice and R. Whitehead (1965), "Electrokinetic flow narrow cylindrical capillaries" *Journal of Physics Chemistry*, 69, pp. 4017-4023
- [11] S. Levine, J. R. Marriott, G. Neale and N. Epstein (1975), "Theory of electrokinetic flow in fine cylindrical capillaries at high zeta potential" *Journal of Colloid Science*, 52, pp. 136-149
- [12] G. M. Mala, D. Li and J. D. Dale (1997), "Heat and transfer and fluid flow in microchannels" *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 40, pp. 3079 - 3088
- [13] M. S. Chun and H. W. Kwak (2003), "Electrokinetic flow and electroviscous effect in a charged slit-like microfluidic channel with non-linear Poisson-Boltzmann field" *Korea-Australia Rheology Journal*, 15, pp. 83-90
- [14] J. Lykema and T. G. Overbeek (1961), "On the interpretation of electrokinetic potentials" *Journal of Colloid Science*, 16, pp. 501-512
- [15] C. Yang and D. Li (1998), "Analysis of electrokinetic effects on the liquid flow in rectangular microchannels" *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 143, pp. 339-353
- [16] S. Arulanandam and D. Li (2000), "Liquid transport in rectangular microchannels by electroosmotic pumping" *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 161, pp. 89-102

- [17] L. Ren and D. Li (2001), "Electroosmotic flow in heterogeneous microchannels" *Journal of Colloid and Interface Science*, 243, pp. 255-261
- [18] X. Y. Chen, K. C. Toh, J. C. Chai and C. Yang (2004), "Developing pressure-driven flow in microchannels under the electrokinetic effect" *International Journal of Engineering Science*, 42, pp. 609-622
- [19] B. Li and D. Y. Kwok (2003), "A lattice Boltzmann model for electrokinetic microchannel flow of electrolyte solution in the presence of external forces with the Poisson–Boltzmann equation" *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 46, pp. 4235 - 4244
- [20] D. A. Grahame (1954), "Differential capacity of mercury in aqueous sodium fluoride solutions. I. Effect of concentration at 25°" *Journal of American Chemical Society*, 76, pp. 4819-4823
- [21] A. Adamson (1967), "Physical chemistry of surfaces", (New-York, London, Sydney, John Wiley and Sons)
- [22] C. L. Ren and D. Li (2004), "Electroviscous effects on pressure driven-flow of dilute electrolyte solutions in small microchannels" *Journal of Colloid and Interface Science*, 274, pp. 319-330
- [23] M. Elimelech, W. H. C. Chen and J. J. Waypa (1994), "Measuring the zeta (electrokinetic) potential of reverse osmosis membranes by a streaming potential analyser" *Desalination*, 95, pp. 269-286
- [24] D. C. Tretheway and C. D. Meinhart (2002), "Apparent fluid slip at hydrophobic microchannel walls" *Physics of fluids*, 14, pp. 9-12
- [25] J. Yang and D. Y. Kwok (2003), "Analytical treatment of flow in infinitely extended circular microchannels and the effect of slippage to increase flow efficiency" *Journal of Micromechanics and microengineering*, 13, pp. 115-123
- [26] J. Yang and D. Y. Kwok (2003), "Effect of liquid slip in electrokinetic parallel-plate microchannel flow" *Journal of Colloid and Interface Science*, 260, pp. 225-233
- [27] W. Qu and D. Li (2000), "A model for overlapped EDL fields" *Journal of Colloid and Interface Science*, 224, pp. 397-407
- [28] L. Osipow (1962), "Surface chemistry : theory and industrial applications" *American chemical society monograph series*, (New York , Reinhold ; London , Chapman)
- [29] S. Tardu (2002), "Effets des forces électrostatiques en microfluidique : double couche électrique à l'interface" *SHF, editor, 1er congrès français de microfluidique*, Toulouse
- [30] G. M. Mala and D. Li (1999), "Flow characteristics of water in microtubes" *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 20, pp. 142-148
- [31] X. F. Peng and G. P. Peterson (1996), "Convective heat transfer and flow friction for water flow in microchannel structures" *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 39, pp. 2599-2608
- [32] K. V. Sharp and R. J. Adrian (2003), "Transition from laminar to turbulent flow in liquid filled microtubes" *Theoretical and Applied Mechanics Reports*, 1030 (University of Illinois at Urbana-Champaign)
- [33] S. Tardu, S. Colin and H. Camon (2003), "Effets interfaciaux sur la stabilité linéaire des écoulements dans les microcanaux" *16ème Congrès Français de Mécanique*, (Nice)
- [34] S. Tardu (2004), "Spatio-temporal evolution of a spot under the EDL effect" *Second International Conference on Microchannels and Minichannels*, pp. 849-853, (Rochester)
- [35] L. Ren, D. Li and W. Qu (2001), "Electro-viscous effects on liquid flow in microchannels" *Journal of Colloid and Interface Science*, 233, pp. 12-22
- [36] P. Vainshtein and C. Gutfinger (2002), "On electroviscous effects in microchannels" *Journal of Micromechanics and microengineering*, 12, pp. 252-256
- [37] F. J. Rubio-Hernandez, F. Carrique and E. Ruiz-Reina (2004), "The primary electroviscous effect in colloidal suspensions" *Advanced in Colloid and Interface science*, 107, pp. 51-60
- [38] D. Burgreen and F. R. Nakache (1964), "Electrokinetic flow in ultrafine capillary slits" *Journal of Physics Chemistry*, 68, pp. 1084-1091
- [39] J. Judy, D. Maynes and B. W. Webb (2002), "Characterization of frictional pressure drop for liquid flows through microchannels" *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45, pp. 3477-3489
- [40] J. Pfahler, J. Harley, H. Ban and J. N. Zemel (1991), "Gas and liquid transport in small microchannels" *ASME Microstructures, Sensors and Actuators*, 32, pp. 49 - 160
- [41] D. Brutin (2003), "Écoulements liquides en microtubes et ébullition convective en minicanaux : étude expérimentale et modélisation" *Thèse de Doctorat*, Université de Provence
- [42] M. Anduze (2000), "Étude expérimentale et numérique de microécoulements liquides dans les microsystèmes fluidiques" *Thèse de Doctorat*, INSA de Toulouse
- [43] I. Papautsky, T. Ameel and A. B. Frazier (2001), "A review of laminar single-phase flow in microchannels" *Proceedings of 2001 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition. New York, USA*
- [44] K. Shinohara, Y. Sugii, K. Okamoto, H. Madarame, A. Hibara, M. Tokeshi and T. Kitamori (2004), "Measurement of pH field of chemically reacting flow in microfluidic devices by laser-induced fluorescence" *Measurement science & technology*, 15, pp. 955-960