



HAL
open science

Dielectric Property Characterization of Liquid Media Using an Open-Ended Probe Within a Microfluidic Chip

Houssein Mariam, Patrick Poulichet, Hakim Takhedmit, Elodie Richalot,
Olivier Français

► **To cite this version:**

Houssein Mariam, Patrick Poulichet, Hakim Takhedmit, Elodie Richalot, Olivier Français. Dielectric Property Characterization of Liquid Media Using an Open-Ended Probe Within a Microfluidic Chip. Instrumentation, Mesure, Métrologie, 2020, 19 (3), pp.169-177. 10.18280/i2m.190301 . hal-02897899

HAL Id: hal-02897899

<https://hal.science/hal-02897899>

Submitted on 17 Jul 2020

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.



Dielectric Property Characterization of Liquid Media Using an Open-Ended Probe Within a Microfluidic Chip

Caractérisation des Propriétés Diélectriques de Milieux Liquides à l'aide d'une Sonde à Effet de Bout sur une Puce Microfluidique

Houssein Mariam^{1,2}, Patrick Poulichet², Hakim Takhedmit¹, Elodie Richalot¹, Olivier Français^{2*}

¹ESYCOM (UMR9007), CNRS, Univ. Gustave Eiffel, 5 Boulevard Descartes, 77420 Champs-sur-Marne, France

²ESYCOM (UMR9007), CNRS, Univ. Gustave Eiffel, ESIEE Paris, 2 Bd Blaise Pascal, 93160 Noisy-le-Grand, France

Corresponding Author Email: olivier.francais@esiee.fr

<https://doi.org/10.18280/i2m.190301>

Received: 24 October 2019

Accepted: 2 March 2020

Keywords:

open-ended probe, microfluidic, dielectric spectroscopy, Debye model, parameter extraction

Mots-clés :

Sonde à effet de bout, microfluidique, spectroscopie diélectrique, modèle de Debye, extraction de paramètres

ABSTRACT:

This article reports an open-ended coplanar waveguide line (OE-CPW) allowing the characterization of a liquid medium by dielectric spectroscopy within the 0.4-6 GHz frequency range. This proposed technology allows characterization of a medium placed in an integrated microfluidic channel located at the end of the CPW line. The medium under test occupies a volume of analysis of less than one nanoliter, scale allowing measurements of one to a few biological cells.

RÉSUMÉ :

Cet article présente une ligne coplanaire (CPW) à extrémité ouverte permettant la caractérisation d'un milieu liquide par spectroscopie diélectrique dans la bande de fréquences 0,4-6 GHz. Le capteur proposé permet de caractériser un liquide s'écoulant dans un canal microfluidique intégré au dispositif et positionné à l'extrémité de la ligne CPW (ligne à effet de bout). Le milieu sous test occupe un volume d'analyse de l'ordre du nanolitre, échelle permettant d'effectuer une mesure sur une ou plusieurs cellules biologiques.

1. INTRODUCTION

La caractérisation de matériaux en spectroscopie diélectrique par réflectométrie fréquentielle est un procédé connu qui permet la caractérisation de milieux homogènes, inhomogènes et/ou poreux (béton, milieux biologiques, ...). Plusieurs technologies sont présentées dans la littérature, chaque technologie se basant sur une méthode d'analyse différente opérée sur une bande de fréquence définie et une zone sensible spécifique (volume d'analyse) [1-3].

A l'aide des microtechnologies, il est possible de proposer un capteur miniaturisé dédié à l'analyse de milieux liquides et/ou biologiques s'appuyant sur ce principe. Développé en technologie coplanaire, le biocapteur microfluidique présenté dans cet article est utilisé dans la gamme de fréquences 400 MHz – 6 GHz et permet l'analyse d'échantillons présentant un volume de l'ordre du nanolitre. Il vise à terme l'analyse d'échantillons biologiques, à l'échelle de la cellule unique, pour en extraire leurs propriétés diélectriques spécifiques et en déduire leurs états physiologiques.

1.1 Propriétés diélectriques des matériaux

Tous les matériaux qui nous entourent sont formés d'atomes et de molécules. Lorsqu'on applique un champ électromagnétique à un matériau diélectrique polarisable mais initialement neutre (sans orientation préférentielle), ce champ oriente les dipôles suivant sa direction et on parle alors de polarisation (Figure 1). Cette polarisation résulte à la

fois des réorientations des molécules (polarisation dipolaire ou dite d'orientation), de leurs déformations (polarisation atomique ou ionique) et de la déformation de chaque nuage électronique des atomes (polarisation électronique).

La relaxation dipolaire se définit comme le retard entre le champ appliqué et l'effet de la polarisation. Elle se mesure par le temps de relaxation τ_r Eq. (1) :

$$\tau_r = \frac{1}{2\pi f_r} \quad (1)$$

où f_r est la fréquence de relaxation.

Ce phénomène de relaxation diélectrique se modélise par une dépendance en fréquence de la permittivité complexe du matériau Eq. (2) :

$$\varepsilon^*(f) = \varepsilon'(f) - j\varepsilon''(f) \quad (2)$$

où ε' et ε'' représentent respectivement la permittivité et les pertes diélectriques du matériau.

Dans la littérature, plusieurs modèles de relaxation sont proposés. Le plus connu est le modèle de « relaxation de Debye » Eq. (3) qui permet une description empirique du comportement de la partie réelle ε' et de la partie imaginaire ε'' de la permittivité complexe ε^* [4, 5] :

$$\varepsilon^*(f) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + 2j\pi\tau_r f} \quad (3)$$

où ϵ_∞ et ϵ_s correspondent respectivement aux permittivités aux fréquences hautes et basses vis-à-vis de f_r .

La Figure 2 présente le modèle théorique pour la permittivité complexe d'un milieu quelconque. Nous constatons que ϵ' est presque constant au-dessous de la relaxation, une transition se produisant à proximité de la fréquence de relaxation. En outre, les pertes diélectriques (ϵ'') sont faibles au-dessus et au-dessous de la fréquence de relaxation où un maximum apparaît, image de la résonance du phénomène.

Dans la gamme de fréquence utilisée dans ce travail, c'est la polarisation dipolaire qui opère principalement. Dans ce cas, le Tableau 1 suivant présente les valeurs des permittivités et des fréquences de relaxation du modèle de Debye de l'eau déionisée, du méthanol et de l'éthanol à 25 °C [6-8].

Tableau 1. Valeurs des permittivités relatives aux fréquences basses et hautes, et fréquences de relaxation mesurées à 25 °C

Liquide (à 25 °C)	ϵ_s	ϵ_∞	f_r (GHz)
Eau déionisée (ED)	78,36	5,20	19,24
Méthanol	32,66	5,56	3,14
Ethanol	24,43	4,505	0,964
Acétone	20,59	4,21	27,44

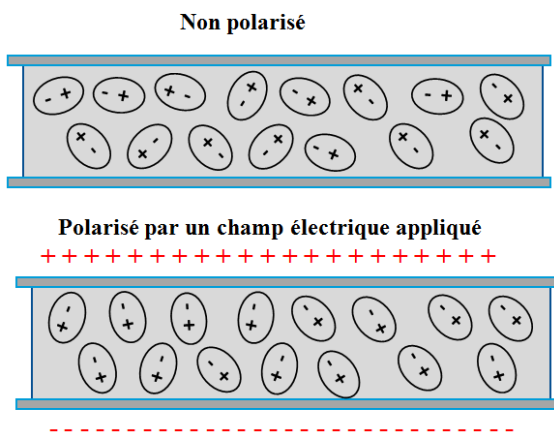


Figure 1. Polarisation d'un milieu diélectrique par un champ électrique

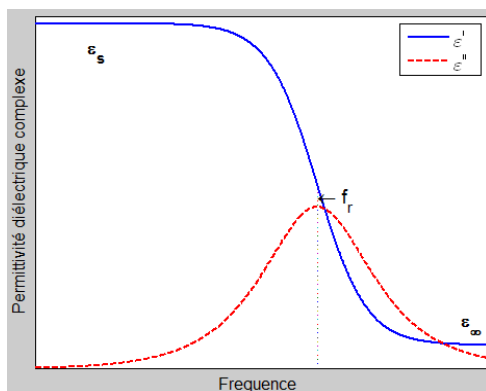


Figure 2. Permittivité complexe d'un matériau

1.2 Mesure HF des propriétés de matériau

Dans la littérature, de nombreuses technologies basées sur l'interaction entre l'onde électromagnétique et le milieu sous test ont été développées pour mesurer les propriétés diélectriques des matériaux. Pour les méthodes non résonantes, la caractérisation des matériaux par l'onde électromagnétique se base sur l'analyse de l'onde réfléchie sur l'objet et/ou de l'onde transmise au travers de ce dernier. Le principe de base de la réflectométrie peut être compris facilement en considérant le cas canonique de la réflexion d'une onde plane sur un milieu semi-infini à caractériser (Figure 3); les coefficients de réflexion et de transmission sont dans ce cas connus de façon analytique (coefficients de Fresnel) et s'écrivent en fonction de la permittivité ϵ^* du milieu ainsi que de l'angle d'incidence et de la polarisation de l'onde incidente.

Ainsi, les coefficients de réflexion s'écrivent suivant la polarisation TE (Eq. (4)) ou TM (Eq. (5)) de l'onde incidente :

$$R_{TE} = \frac{\sqrt{\epsilon_0} \cos \theta_i - \sqrt{\epsilon^*} \cos \theta_t}{\sqrt{\epsilon_0} \cos \theta_i + \sqrt{\epsilon^*} \cos \theta_t} \quad (4)$$

et

$$R_{TM} = \frac{\sqrt{\epsilon_0} \cos \theta_t - \sqrt{\epsilon^*} \cos \theta_i}{\sqrt{\epsilon_0} \cos \theta_t + \sqrt{\epsilon^*} \cos \theta_i} \quad (5)$$

où l'angle de transmission θ_t est donné par Eq. (6) [9] :

$$\sqrt{\epsilon^*} \cos \theta_t = \sqrt{\epsilon_0} \sin \theta_i \quad (6)$$

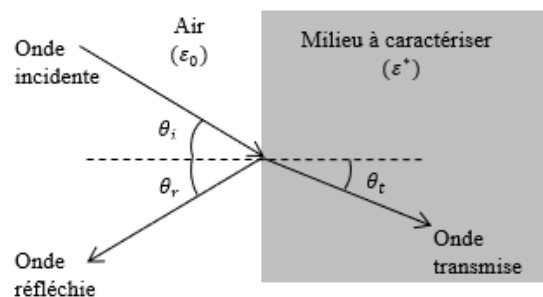


Figure 3. Illustration du mécanisme fondamental de la réflectométrie : réflexion d'une onde plane à l'interface entre l'air et un milieu diélectrique semi-infini

Parmi les méthodes de caractérisation les plus prometteuses, on peut citer : l'utilisation de plaques parallèles, de lignes de transmission coaxiales et de guides d'onde, d'une sonde coaxiale (cf. Figures 4, 5 et 6), et des techniques de mesure en espace libre et en cavité résonante comme montrées sur la Figure 4.

Ces technologies sont préférables pour les liquides et les matériaux semi-solides (poudre) ayant un volume d'analyse de l'ordre du mL.

En s'appuyant sur les micro-technologies, il est possible de proposer un capteur miniaturisé permettant l'analyse de milieux liquides et/ou biologiques de très faible volume. La technologie coplanaire (CPW : CoPlanar Waveguide) est un candidat adéquat pour ces applications. En effet, le choix de cette technologie pour la détection capacitive facilite la co-intégration avec le canal microfluidique, placé en bout de ligne.

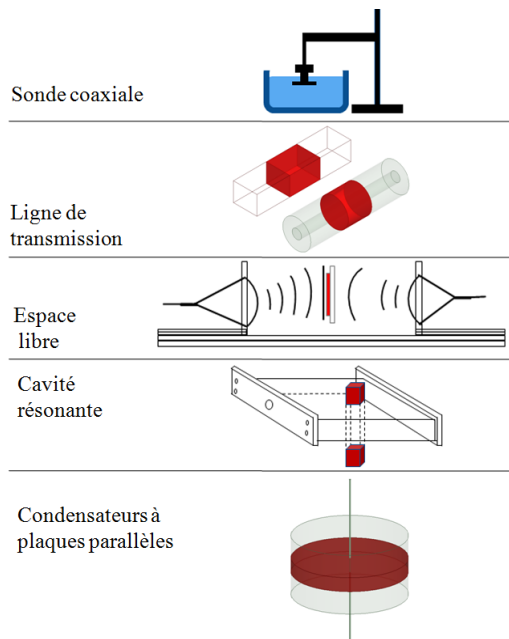


Figure 4. Techniques de mesure des matériaux

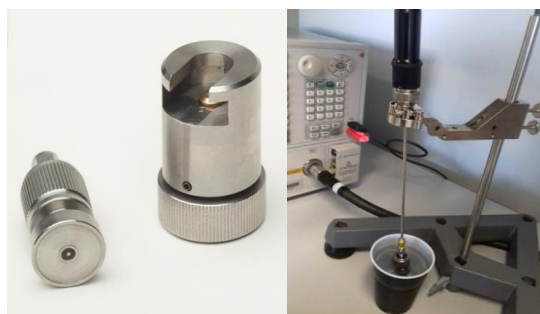


Figure 5. (a) Sonde à effet de bout 85070E d'Agilent, (b) Mesure au laboratoire ESYCOM

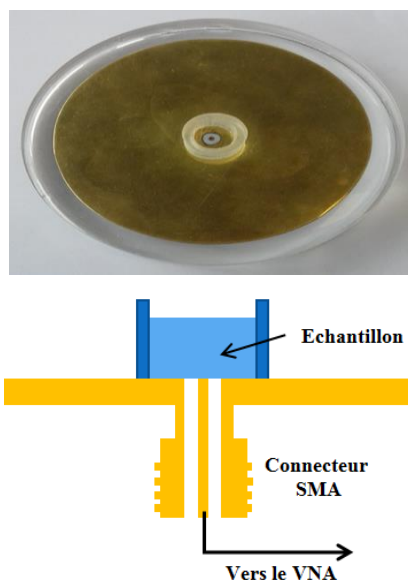


Figure 6. Sonde coaxiale utilisée pour comparaison [3]

2. PUCE MICROFLUIDIQUE MINIATURISEE

Les dimensions du dispositif hyperfréquence intégré sur une puce microfluidique sont illustrées sur les Figures 7 et 8.

Un canal microfluidique de hauteur de $25\ \mu\text{m}$ et d'une largeur de $300\ \mu\text{m}$ est réalisé en résine SU-8 et placé en bout de ligne. Il guide le fluide à analyser au-dessus de la zone active qui n'est autre qu'une partie de ligne CPW de longueur $150\ \mu\text{m}$.

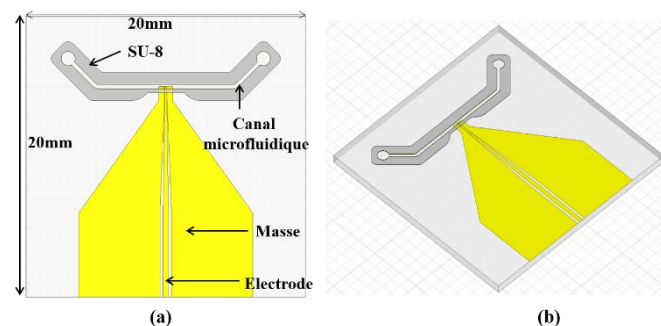


Figure 7. (a) Schéma du dispositif en vue de dessus, (b) Schéma du dispositif en 3D

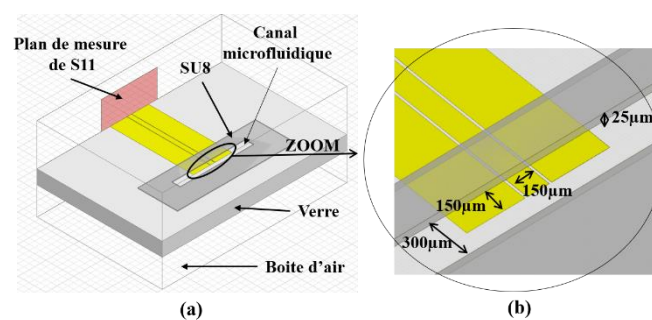


Figure 8. (a) Modèle 3D du dispositif simulé sur HFSS, (b) Zone sensible

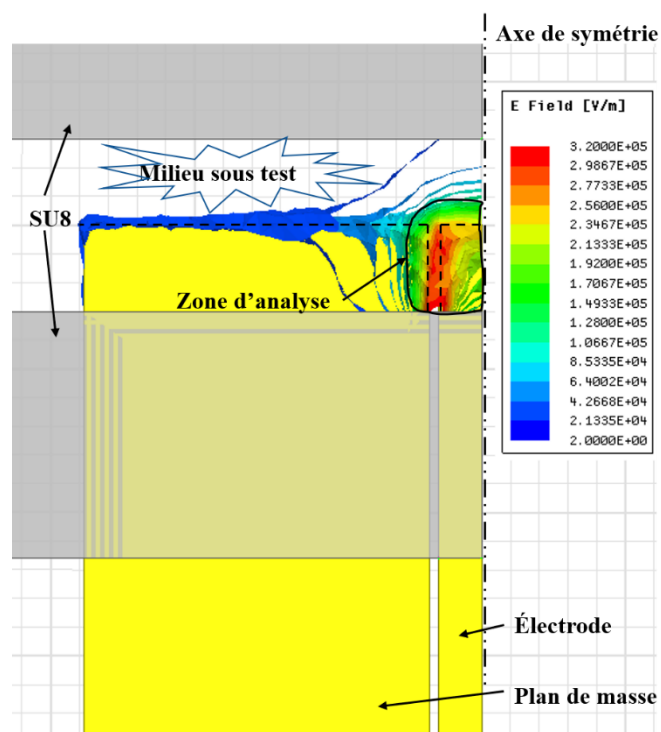


Figure 9. Distribution de l'amplitude du champ électrique dans le canal microfluidique en vue de dessus. En raison des propriétés de symétrie, seule la moitié (partie gauche) de la structure est représentée

Les phases de conception et d'analyse de ce nouveau dispositif se sont appuyées sur l'utilisation du simulateur électromagnétique 3D HFSS © de la société ANSYS. Les résultats obtenus ont permis de valider la méthode d'extraction des propriétés diélectriques des liquides retenue par la suite. La Figure 8 présente le modèle 3D de la structure simulée sur HFSS. La simulation et l'analyse des résultats ont été effectuées sur la bande fréquentielle allant de 400 MHz à 6 GHz.

La Figure 9 illustre la distribution de l'amplitude du champ électrique dans la zone d'analyse à 5 GHz. La simulation électromagnétique montre que le champ électrique est fortement concentré dans le canal sur une épaisseur de 25 µm environ au-dessus de l'extrémité de la ligne, et ceci sur une largeur de 150 µm, ce qui donne un volume d'analyse autour de la dizaine de nanolitres.

3. METHODE DE CARACTERISATION DIELECTRIQUE PAR INVERSION DU COEFFICIENT DE REFLEXION

L'interaction entre l'onde électromagnétique hyper-fréquence et le liquide au sein du canal microfluidique est dépendante des propriétés diélectriques du milieu. A partir de la mesure du coefficient de réflexion S_{11} , il est possible d'extraire la permittivité complexe du milieu et ceci pour une large bande de fréquence [3].

Sur la Figure 10, un schéma électrique explicatif du fonctionnement du biocapteur est présenté ainsi qu'un schéma simplifié équivalent en éléments localisés.

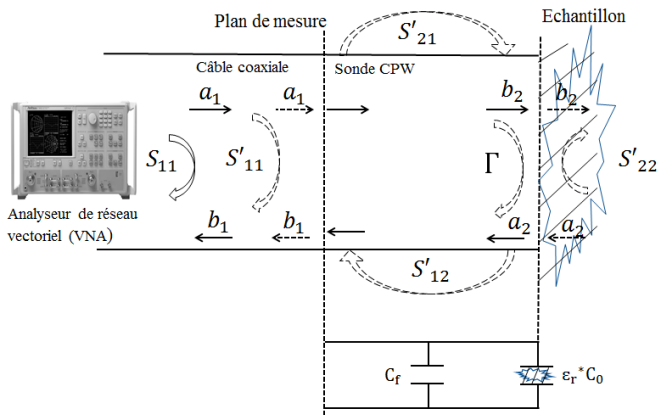


Figure 10. Schéma électrique équivalent du biocapteur

Les deux condensateurs placés en parallèle modélisent, dans une approximation du premier ordre, l'interface entre l'ouverture de la sonde CPW et l'échantillon sous test. L'effet de la ligne d'accès sous le micro-canal est représenté par la capacité C_f et C_0 est une capacité de détection qui dépend des effets des champs situés à l'extérieur de la ligne et qui est couplée à l'échantillon via sa permittivité ϵ_r^* .

L'impédance équivalente s'écrit donc Eq. (7) :

$$Z^* = (j\omega C_f + j\omega \epsilon_r^* C_0)^{-1} \quad (7)$$

A partir du coefficient de réflexion complexe Γ à l'interface entre l'extrémité du biocapteur et l'échantillon, il est possible de déterminer l'impédance complexe Z^* Eq. (8) qui dépend des propriétés diélectriques de ce dernier :

$$Z^* = \frac{1}{Y^*} = Z_0 \frac{1 - \Gamma}{1 + \Gamma} \quad (8)$$

où Z_0 est l'impédance caractéristique d'une ligne sans perte.

De manière générale, la matrice de diffusion S' est définie comme Eq. (9) :

$$\begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S'_{11} & S'_{12} \\ S'_{21} & S'_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} \quad (9)$$

Grâce au graphe de fluence de la sonde représentée sur la Figure 11 et l'équation (9), et en notant que $S_{11} = \frac{b_1}{a_1}$ et $\Gamma = \frac{a_2}{b_2}$, nous trouvons Eq. (10) :

$$S_{11} = S'_{11} + S'_{12} \frac{a_2}{a_1} \text{ et } \Gamma = \frac{S_{11} - S'_{11}}{S'_{22} S_{11} - \det S'} \quad (10)$$

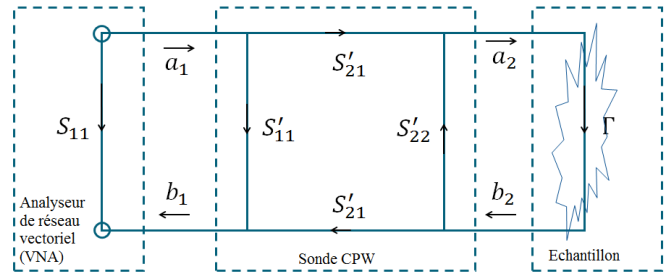


Figure 11. Graphe de fluence de la sonde

En utilisant (7), (8) et (9), on déduit l'équation bilinéaire Eq. (11) [1, 10] :

$$S_{11} = \frac{c_2 + c_3 \epsilon_r^*}{c_1 + \epsilon_r^*} \quad (11)$$

c_1, c_2 et c_3 sont trois coefficients complexes données par Eq. (12), (13), (14) :

$$c_1 = \frac{1 - S'_{22}}{j\omega Z_0 C_0 (1 + S'_{22})} + \frac{C_f}{C_0} \quad (12)$$

$$c_2 = \frac{S'_{11} - S'_{11} S'_{22} + S'_{12} S'_{21}}{j\omega Z_0 C_0 (1 + S'_{22})} + \frac{C_f (S'_{11} + S'_{11} S'_{22} - S'_{12} S'_{21})}{C_0 (1 + S'_{22})} \quad (13)$$

$$c_3 = \frac{S'_{11} + S'_{11} S'_{22} - S'_{12} S'_{21}}{j\omega Z_0 C_0 (1 + S'_{22})} \quad (14)$$

4. ETAPE DE CALIBRAGE

La caractérisation de la permittivité diélectrique du milieu sous test s'appuie sur l'analyse de la mesure du coefficient de réflexion S_{11} de la puce microfluidique et nécessite une phase de calibration avec au moins trois milieux de référence qui ont un comportement bien connu dans la littérature (par exemple air, eau déionisée, acétone).

L'équation suivante Eq. (15) décrit une relation linéaire entre le coefficient de réflexion mesuré S_{11} et la permittivité relative complexe du milieu sous test :

$$\varepsilon_r^* = \frac{c_1 S_{11} - c_2}{c_3 - S_{11}} \quad (15)$$

où c_1, c_2 et c_3 sont des nombres complexes déterminés par la mesure des coefficients de réflexion S_{11} des milieux de référence (voir section 2).

Nous avons utilisé comme milieux de calibrage l'air ($\varepsilon_{r,o}^* = 1, S_{11} = S_{11}^O$), l'eau déionisée ($\varepsilon_r^* = \varepsilon_{r,W}^*, S_{11} = S_{11}^W$) et l'acétone ($\varepsilon_r^* = \varepsilon_{r,A}^*, S_{11} = S_{11}^A$) afin de calculer c_1, c_2 et c_3 .

Ainsi, selon Eq. (15), nous obtenons les relations Eq. (16), (17), (18) :

$$S_{11}^O c_1 - c_2 - \varepsilon_{r,o}^* c_3 = -\varepsilon_{r,o}^* S_{11}^O \quad (16)$$

$$S_{11}^W c_1 - c_2 - \varepsilon_{r,W}^* c_3 = -\varepsilon_{r,W}^* S_{11}^W \quad (17)$$

$$S_{11}^A c_1 - c_2 - \varepsilon_{r,A}^* c_3 = -\varepsilon_{r,A}^* S_{11}^A \quad (18)$$

Ce système d'équations peut être réécrit sous forme matricielle Eq. (19) :

$$\begin{pmatrix} S_{11}^O - 1 & -\varepsilon_{r,o}^* \\ S_{11}^W - 1 & -\varepsilon_{r,W}^* \\ S_{11}^A - 1 & -\varepsilon_{r,A}^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ c_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\varepsilon_{r,o}^* S_{11}^O \\ -\varepsilon_{r,W}^* S_{11}^W \\ -\varepsilon_{r,A}^* S_{11}^A \end{pmatrix} \Leftrightarrow M c = e \quad (19)$$

Dans ce cas, le vecteur c sera déterminé numériquement par la relation $c = M^{-1}e$. Ensuite, la permittivité relative complexe ε_r^* d'un échantillon inconnu sera obtenue par la mesure du coefficient de réflexion S_{11} en utilisant Eq. (15).

Cependant, si les mesures sont faites avec plus de trois échantillons connus, alors l'inverse de la matrice M doit être réécrit comme $c = (M^T M)^{-1} M^T e$ et résolu numériquement.

5. PROCÉDES DE FABRICATION DU CAPTEUR EN SALLE BLANCHE

La fabrication du biocapteur s'appuie sur l'utilisation des procédés issus de la microélectronique [11] (photolithographie). Elle se décompose en 4 étapes principales (Figure 12) :

- dépôt d'une couche mince conductrice sur un substrat en verre,
- photolithographie de la couche mince conductrice pour définir la ligne CPW,
- dépôt d'une couche de résine SU-8 en vue de l'élaboration du micro-canal,
- photolithographie de la résine SU-8 pour la structuration du canal microfluidique en bout de ligne CPW.

Le procédé commence par un nettoyage du substrat pour éliminer tout contaminant organique ou métallique présent sur le substrat.

Lors de la première étape (Figure 12a), une couche mince de TiW (20 nm – couche d'accroche) et d'or (200 nm – couche de métallisation) est déposée par pulvérisation cathodique sur le substrat en verre. Elle est ensuite exposé à la photolithographie (Figure 12b). Lors de cette étape, l'utilisation d'un masque formé de zones opaques et transparentes, permet de transférer l'image du capteur que l'on souhaite reproduire sur la plaquette.

Dans un deuxième temps, le canal microfluidique est

réalisé par l'utilisation d'un polymère photosensible déposé sur la surface du substrat (résine SU8-2025). Il est ensuite insolé par photolithographie au travers d'un masque qui définit la forme du microcanal lors du développement (Figures 12c et 12d). Le dispositif obtenu par ce procédé de fabrication est présenté sur la Figure 13 suivante.

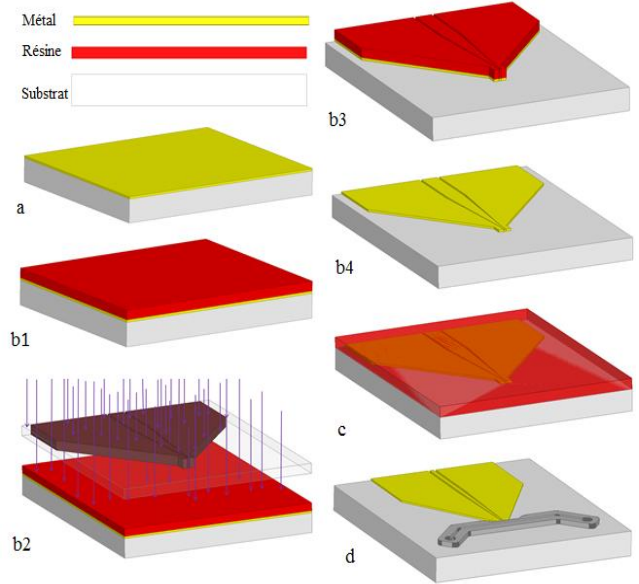


Figure 12. Étapes de la fabrication du capteur microfluidique par photolithographie. (a) - Dépôt du métal, (b1) - Dépôt de la résine photosensible, (b2) - Isolation des UV par la présence du masque, (b3) - Développement de la résine, (b4) - Nettoyage - (c) dépôt de résine SU-8 - (d) photolithographie et développement résine.

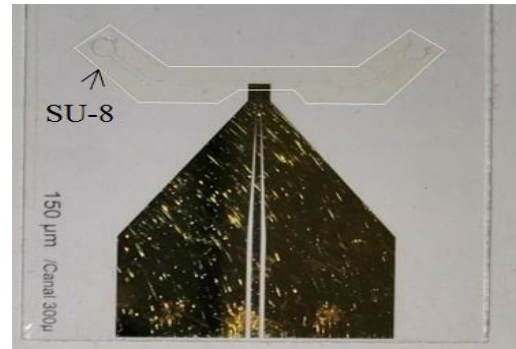


Figure 13. Dispositif fabriqué en salle blanche de l'ESIEE-Paris

6. RESULTATS DE SIMULATION ET DE MESURES

6.1 Analyse du capteur par simulation numérique

Afin de réduire les temps de simulation, un design simplifié a été simulé sous HFSS (Figure 8) en se focalisant sur la zone d'interaction entre la ligne CPW et le milieu sous test dans le canal microfluidique.

La Figure 14 représente l'évolution des coefficients de réflexion S_{11} simulés pour différents milieux introduits dans le canal.

La Figure 15 présente les parties réelle et imaginaire des permittivités diélectriques des différents milieux obtenus par le modèle de Debye (courbes théoriques). Ces valeurs sont

comparées aux permittivités diélectriques complexes extraites des paramètres S_{11} obtenus par simulation du capteur avec HFSS après la phase de post-traitement exposée ci-dessus.

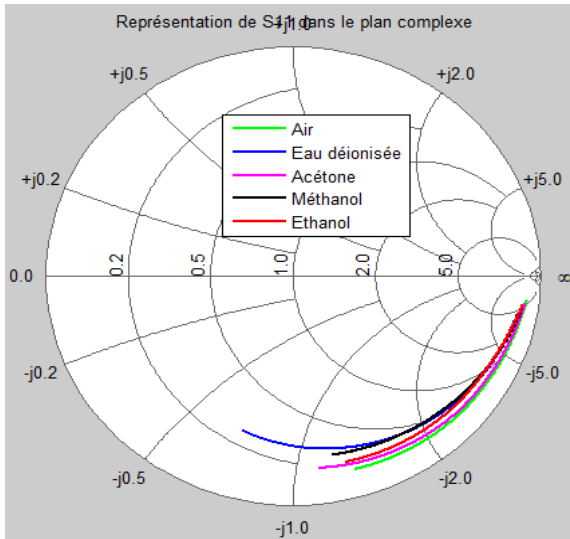


Figure 14. Représentation des coefficients de réflexion S_{11} simulés de 400 MHz à 6 GHz sur l'abaque de Smith pour différents liquides dans le canal microfluidique

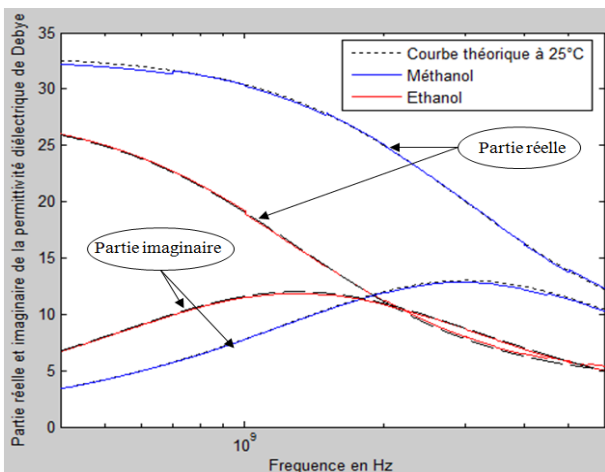


Figure 15. Propriétés diélectriques théoriques ou extraites des simulations sur HFSS, des différents milieux.

On obtient une très bonne adéquation entre la permittivité diélectrique ainsi estimée et celle, théorique, ayant alimentée le modèle HFSS pour chacun des milieux. Ceci montre la pertinence du capteur miniaturisé associé à la méthode d'extraction utilisée pour déterminer le modèle de Debye des milieux testés, et ceci sur une large bande de fréquences allant de 400 MHz à 6 GHz.

Ces résultats confortent la méthode d'analyse des propriétés diélectriques des fluides sous test et qui repose sur des mesures de réflectométrie au moyen d'une ligne CPW intégrée sur une puce microfluidique; ces résultats valident également la méthode d'extraction des constantes diélectriques à partir d'une phase de calibrage avec des milieux de référence connus.

6.2 Mise en œuvre du capteur et mesures

Afin d'effectuer la mesure à l'aide d'un analyseur de

réseau vectoriel (VNA : Vector Network Analyzer), la puce a été assemblée sur un support PCB intégrant un connecteur SMA (Figure 16). Les mesures présentées sont effectuées dans la gamme fréquentielle allant de 0,4 à 6 GHz par pas de 2,5 MHz et à une température ambiante ($T = 25^\circ\text{C}$).

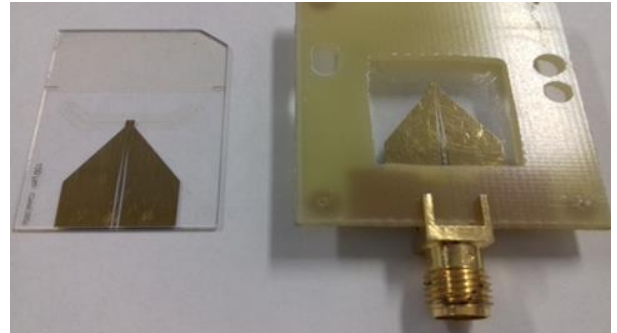


Figure 16. Puce microfluidique fabriquée et connectorisée

Le coefficient de réflexion S_{11} est mesuré à l'aide d'un analyseur de réseaux vectoriel (PNA E8361C de Keysight). Selon les milieux mesurés (air, eau déionisée, acétone, méthanol et éthanol), le coefficient de réflexion S_{11} se positionne différemment sur l'abaque de Smith selon les propriétés diélectriques des différents milieux testés (Figure 17).

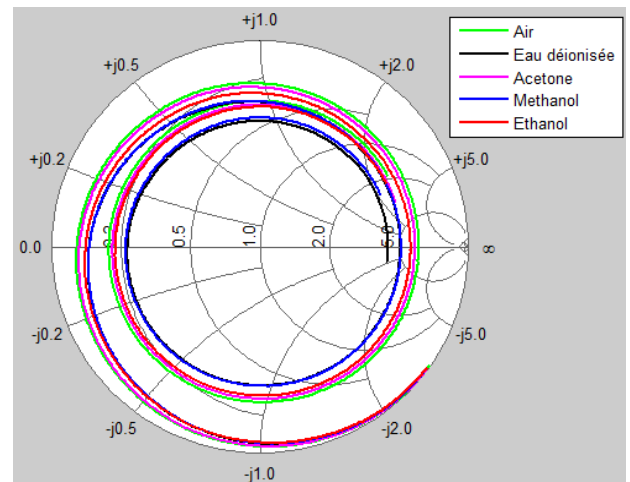


Figure 17. Coefficients de réflexion S_{11} mesurés de 400 MHz à 6 GHz pour différents liquides dans le canal microfluidique et représentés sur l'abaque de Smith

Afin de montrer la robustesse de la méthode vis-à-vis du choix des milieux de référence pour le calibrage, nous avons effectué l'extraction des propriétés de milieux à partir des mesures en considérant à chaque fois trois milieux de référence différents.

6.3 Extraction et analyse des propriétés diélectriques des milieux mesurés

En utilisant les résultats des mesures et le protocole d'extraction s'appuyant sur les trois milieux de calibrage {Air, eau déionisée, Acétone}, les permittivités complexes diélectriques du méthanol et de l'éthanol ont été déterminées.

Les Figures 18 et 19 représentent, respectivement, les permittivités diélectriques extraites à partir des résultats de mesure à 25°C du méthanol et de l'éthanol comparées avec

des courbes obtenues par ajustement sous le logiciel de calcul scientifique Matlab® (à l'aide de la fonction Matlab® lsqcurvefit) et celles théoriques. Ce programme permet d'approcher au mieux le tracé d'une courbe au sens des moindres carrés avec l'expression analytique sous la forme donnée en Eq. (3).

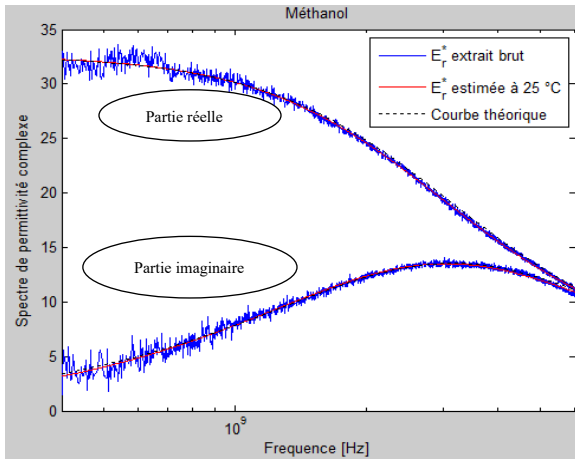


Figure 18. Parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique du méthanol théoriques et extraites des résultats de mesure (résultats bruts et courbes d'ajustement)

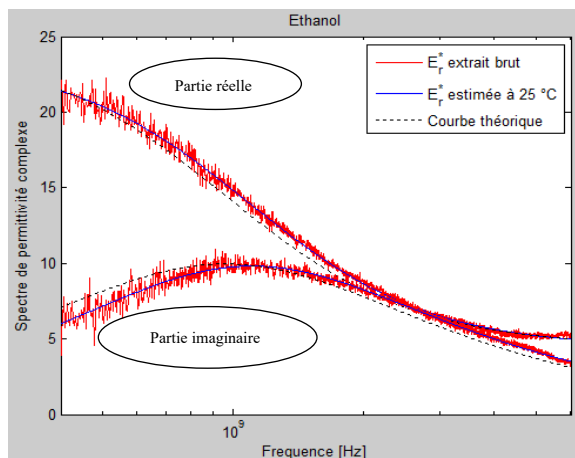


Figure 19. Parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique de l'éthanol théoriques et extraites des résultats de mesure (résultats bruts et courbes d'ajustement)

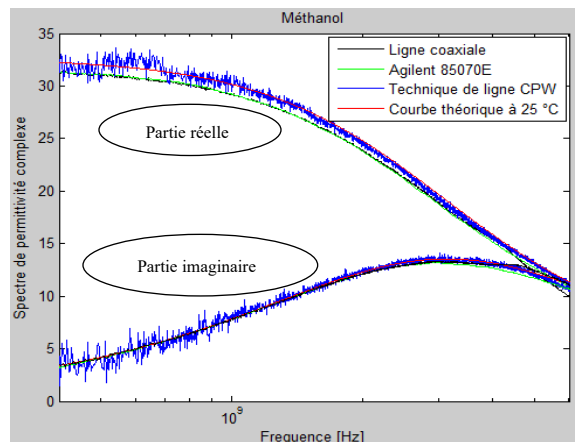


Figure 20. Comparaison de ϵ_r^* du méthanol mesurés par trois dispositifs différents

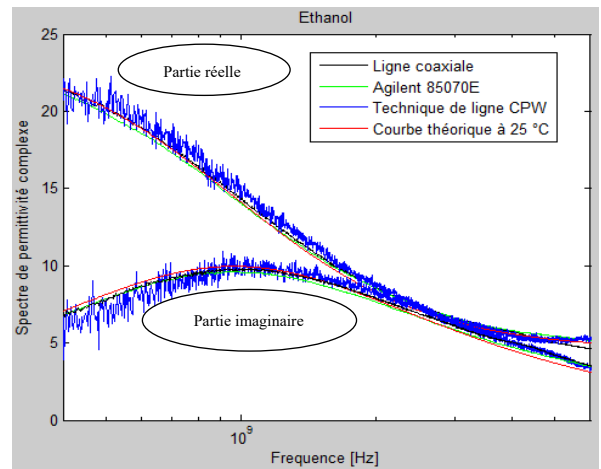


Figure 21. Comparaison de ϵ_r^* de l'éthanol mesurés par trois dispositifs différents

On retrouve un comportement du type de Debye avec une constante de relaxation attendue à 25°C (53,1 ps contre 50,6 ps pour le méthanol; 150,1 ps contre 165,1 ps pour l'éthanol). Il est à noter que la mesure des propriétés de l'éthanol est plus délicate en raison de son évaporation au cours de la mesure.

Sur les Figures 20 et 21, une comparaison est présentée entre la permittivité extraite par notre dispositif, celle mesurée par la sonde Agilent 85070E (Figure 5) et par la sonde coaxiale à ligne ouverte (Figure 6). Un bon accord est obtenu entre les différentes méthodes de caractérisation.

6.4 Influence des milieux de calibrage

6.4.1 Cas 1 : Air, Acétone et Méthanol

Bien que la permittivité relative réelle de l'eau ait une valeur très éloignée de celles des milieux utilisés par le calibrage et excède largement la permittivité la plus élevée des milieux de référence ($\epsilon_{r,O}^* = 1$ pour l'air, $\epsilon_{r,A}^* = 21$ pour l'acétone et $\epsilon_{r,M}^* = 32,66$ pour le méthanol), on retrouve une permittivité de l'eau désionisée avec une très bonne précision, ici $\epsilon_{r,w}^* = 78,36$ (Figure 22).

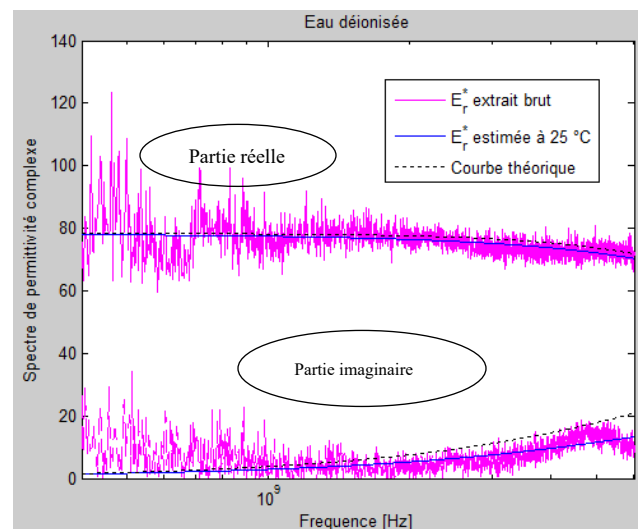


Figure 22. Parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique de l'eau désionisée théoriques ou extraites de la mesure

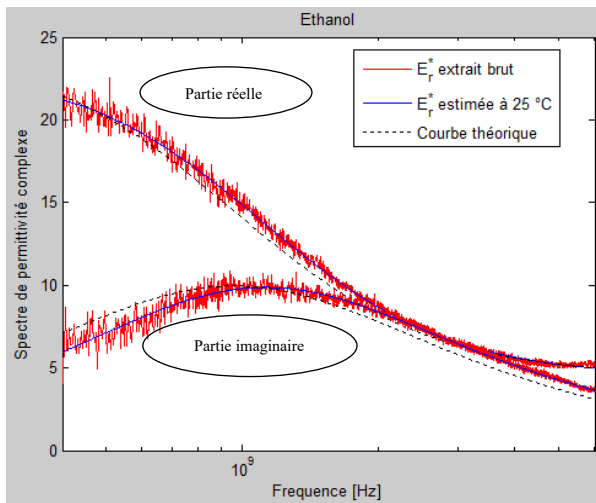


Figure 23. Parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique de l'éthanol théoriques ou extraites de la mesure avec un calibrage : air, méthanol, acétone

Nous avons effectué la même mesure pour l'éthanol. La courbe rouge sur la Figure 23 nous montre que, si on change les références de calibrage, on retrouve le même comportement du type de Debye dans la bonne gamme de fréquences.

6.4.2 Cas 2 : Air, Eau déionisée, Méthanol

La Figure 24 présente les résultats de caractérisation de la permittivité diélectrique de l'acétone.

On retrouve les caractéristiques diélectriques de l'acétone avec une bonne corrélation sur le comportement en fréquence dans notre gamme de mesure (0,4 à 6 GHz).

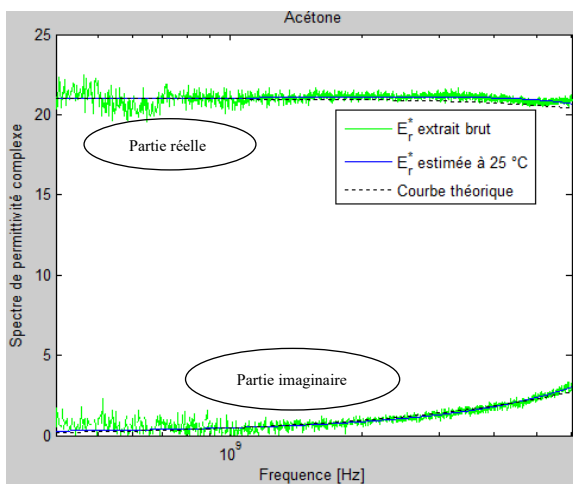


Figure 24. Parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique de l'acétone théoriques ou extraites de la mesure

7. DISCUSSIONS

L'ensemble des résultats expérimentaux montre une bonne concordance entre les permittivités extraites et les résultats théoriques après application de la méthode d'extraction et ceci quelques soient les milieux de calibrage.

Néanmoins, la permittivité présente des fluctuations notamment à basse fréquence. Cela peut s'expliquer par une désadaptation de l'impédance d'entrée du biocapteur.

Une simulation sur HFSS a été faite afin d'extraire la variation de l'impédance caractéristique de la ligne CPW (Figure 25). Comme l'illustre cette Figure 25, on peut remarquer que l'impédance caractéristique Z_0 est comprise entre 78,95 Ω et 77,54 Ω à basse fréquence (400 MHz – 600 MHz), elle diminue jusqu'à 76,64 Ω à 1 GHz pour se situer entre 76,00 Ω et 75,3 Ω au lieu de 50 Ω dans la bande fréquentielle 1,7 – 6 GHz. Cette variation d'impédance influence la mesure.

De plus, l'impédance caractéristique de l'accès de la mesure est ici de 50 Ω et cette rupture d'impédance participe aussi de la dégradation des mesures.

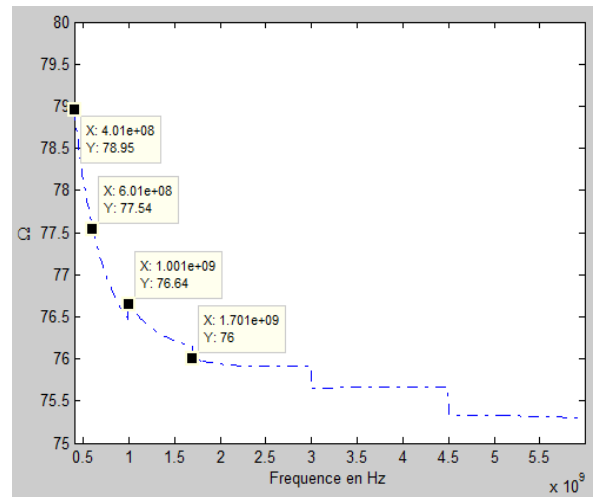


Figure 25. Impédance caractéristique simulée sur HFSS de la ligne d'accès coplanaire

La procédure de calibrage nécessite un bon nettoyage de la zone de mesure entre chaque étape ainsi qu'une bonne maîtrise de la zone du capteur impactée par le liquide. Cette étape joue un rôle important et peut aussi jouer sur la précision de mesure.

Le Tableau 2 suivant présente une synthèse des différentes valeurs de permittivité complexe et fréquence de relaxation obtenues par ajustement après l'extraction et l'écart en % par rapport aux valeurs théoriques.

Tableau 2. Valeurs des permittivités et fréquence de relaxation obtenues par ajustement à 25 °C

Liquide (à 25 °C)	ϵ_s	ϵ_∞	f_r (GHz)
Méthanol	32,60	5,76	2,95
	1,35%	7,10%	5,96%
Ethanol	23,31	4,37	1,06
	5,04%	6,18%	11,69%
Eau déionisée	78,06	--	--
	0,57%		

Ainsi, les résultats obtenus en simulation et lors de campagnes de mesure (Tableau 2) ont permis de valider à la fois le principe du capteur proposé (intégration au sein d'un canal microfluidique) et la méthode d'extraction des propriétés diélectriques.

Afin d'augmenter la sensibilité du capteur, il serait nécessaire de s'affranchir de la transition vers le connecteur SMA rendue nécessaire par l'équipement de mesure ici utilisé et d'optimiser l'impédance d'accès à la zone de mesure. Une solution, au-delà d'un redimensionnement de la

puce, est de permettre des mesures sous pointes au niveau de l'accès coplanaire par exemple.

8. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les résultats obtenus autant par la simulation que par la caractérisation expérimentale montrent qu'il est pertinent de s'appuyer sur les microtechnologies en vue de réaliser un biocapteur permettant la mesure des propriétés diélectriques de milieux liquides, pouvant être de nature biologique.

La ligne CPW, intégrée dans un canal microfluidique, a été réalisée par deux étapes de photolithographie en salle blanche.

La méthode d'extraction de la permittivité complexe des milieux liquides, utilisant une étape de calibrage à l'aide de trois références, s'est montrée fonctionnelle et a permis de valider le fonctionnement global du capteur. Il est à noter que les résultats obtenus en simulation et en mesure sont très proches.

Les résultats de mesures obtenus sont comparés avec ceux provenant de mesures réalisées par des capteurs similaires, mais adressant des volumes beaucoup plus grands. Les permittivités complexes extraites sont très proches et permettent de valider le bon fonctionnement de notre biocapteur. La connaissance des permittivités et fréquences de relaxation peuvent ensuite permettre l'identification des liquides et en particulier des mélanges [12].

Les perspectives d'applications en direction de la caractérisation de milieux hétérogènes concernent l'analyse d'échantillons de quelques nanolitres et contenant quelques cellules biologiques dont on cherchera à analyser les propriétés diélectriques en lien avec la présence ou non d'une pathologie (type cellulaire, cancer, anémie,...); des variations de propriétés diélectriques sont en effet observées sur des tissus malades [13, 14].

REFERENCES

- [1] Marsland, T., Evans, S. (1987). Dielectric measurements with an open-ended coaxial probe. *IEEE Proceedings H Microwaves, Antennas and Propagation*, 134(4): 341-349. <http://dx.doi.org/10.1049/ip-h-2.1987.0068>
- [2] Dalmay, C., Pothier, A., Cheray, M., Lalloue, F., Jauberteau, M.O., Blondy, P. (2009). Label free RF biosensors for human cell dielectric spectroscopy. *Int. J. Microwave and Wireless Technologies*, 1(6): 497-504. <http://dx.doi.org/10.1017/S1759078709990614>
- [3] Wagner, N., Schwing, M., Scheuermann, A. (2013). Numerical 3-D FEM and experimental analysis of the open-ended coaxial line technique for microwave dielectric spectroscopy on soil. *IEEE Geoscience and Remote Sensing Society*, 52(2): 880-893. <http://dx.doi.org/10.1109/TGRS.2013.2245138>
- [4] Debye, P. (1913). *Ver. Deut. Phys. Gesell.* 15, 777. Reprinted 1954 in collected papers of Peter J.W. Debye Interscience, New York.
- [5] Debye, P. (1929). Polar molecules. *J. Soc. Chem. Ind.*, 48(43): 1036-1037.
- [6] Kaatze, U. (2007). Non-conducting and conducting reference liquids for the calibration of dielectric measurement systems. In *Proc. 7th Int. Conf. Electromagn. WaveInteract. Water Moist Substances*, pp. 3-11.
- [7] Ellison, W.J. (2007). Permittivity of pure water, at standard atmospheric pressure, over the frequency range 0–25 THz and the temperature range 0–100 °C. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 36(1): 1-18.
- [8] Gregory, A.P. (2012). Tables of the complex permittivity of dielectric reference liquids at frequencies up to 5 GHz. National Physical Laboratory.
- [9] Perez, J.P., Carles, R., Fleckinger, R., *Electromagnétisme, Vide et milieux matériels*. pp. 515–519. Dunod 1991.
- [10] Bao, J.Z., Davis, C., Swicord, M. (1994). Microwave dielectric measurements of erythrocyte suspensions. *Biophys. Soc. All Rights Res. Biophys. J.*, 66(6): 2173-2180. [http://dx.doi.org/10.1016/S0006-3495\(94\)81013-6](http://dx.doi.org/10.1016/S0006-3495(94)81013-6)
- [11] Fikar, P., Lissorgues, G., Rousseau, L., Français, O., Le Pioufle, B., Hamdi, S.F., Georgiev, V., Georgiev, D. (2017). SU-8 microchannels for live cell dielectrophoresis improvements. *Microsyst Technol*, 23(9): 3901-3908. <http://dx.doi.org/10.1007/s00542-015-2725-y>
- [12] FitzPatrick. G.J., Forster, E. (1985). The dielectric behavior of straight chain alcohol blends. *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, 20(6): 939-941. <http://dx.doi.org/10.1109/TEI.1985.348733>
- [13] Gabriel, S., Lau, R.W., Gabriel, C. (1996). The dielectric properties of biological tissues: II. Measurements in the frequency range 10 Hz to 20 GHz. *Phys. Med. Biol*, 41(11): 2251-2269. <http://dx.doi.org/10.1088/0031-9155/41/11/002>
- [14] Stoneman, M.R., Kosempa, M., Gregory, W.D., Gregory, C.W., Marx, J.J., Mikkelsen, W., Tjoe, J., Raicu, V. (2007). Correction of electrode polarization contributions to the dielectric properties of normal and cancerous breast tissues at audio/radiofrequencies. *Phys. Med. Biol.*, 52(2): 6589-6604. <http://dx.doi.org/10.1088/0031-9155/52/22/003>