

Migration de particules par gradients salins

CYRIL MAUGER^a, NATHANAËL MACHICOANE^a, ROMAIN VOLK^a, MICKAËL BOURGOIN^b,
CÉCILE COTTIN-BIZONNE^c, CHRISTOPHE YBERT^c ET FLORENCE RAYNAL^d

a. *Laboratoire de Physique, UMR CNRS 5672, École Normale Supérieure de Lyon, Lyon, France*

b. *Laboratoire des Écoulements Géophysiques et Industriels, UMR CNRS 5519, Grenoble, France*

c. *Laboratoire de la Matière Condensée et Nanostructures, UMR CNRS 5586, Université Lyon 1, Villeurbanne, France*

d. *Laboratoire de Mécanique des Fluides et d'Acoustique, UMR CNRS 5509, Écully, France*

Résumé :

L'influence de gradients salins sur des colloïdes (diffusiophorèse) est étudiée expérimentalement dans une cellule de Hele-Shaw. On utilise différentes espèces de coefficients de diffusion distincts et marquées par fluorescence. La caractérisation du mélange est réalisée au moyen d'un montage par fluorescence induite et d'un appareil photographique de haute résolution. Nous étudions tout d'abord les champs de concentration par une méthode de floutage pour accéder à des coefficients de diffusion effectifs. Des spectres d'énergie 2D des champs scalaires ont été calculés pour les différentes espèces sans présence du sel. Ces spectres révèlent une échelle de coupure proportionnelle à $Pe^{-\frac{1}{2}}$ comme prédit théoriquement. Les spectres de mélange des colloïdes obtenus avec du sel ne semblent pas obéir à ce comportement. Une analyse plus fine sur les profils de diffusion en présence de sel est donc menée et révèle une influence de ce dernier dès les premiers instants du mélange, puis cesse rapidement une fois que le sel a diffusé dans la totalité de la cellule.

Abstract :

The influence of salt gradients on colloids (diffusiophoresis) is experimentally studied in a Hele-Shaw cell. Different dye labeled species with different diffusivity are used. Mixing is characterized using a laser-induced fluorescence method and a high-resolution camera. We first study the concentration fields using a coarse graining method in order to obtain effective diffusion coefficients. Two-dimensional power spectra of the scalar field are calculated for the different species without salt. The resulting spectra show a $Pe^{-\frac{1}{2}}$ behavior, as theoretically predicted. The mixing spectra obtained with salt show a different behavior. Diffusion profiles are therefore further analyzed. It turns out that salt has an influence at the very beginning of the mixing process and that the influence rapidly stops when salt is diffused in the whole cell.

Mots clefs : mélange, diffusiophorèse, PLIF

1 Introduction

Le transport et le mélange de molécules ou de particules jouent un rôle significatif dans de nombreux processus. À très petite échelle notamment, ils constituent un enjeu important pour le développement de laboratoires sur puce, les dimensions réduites interdisant en effet tout processus de mélange turbulent. Une voie prometteuse pour l'amélioration du mélange dans des micro-systèmes s'appuie sur la génération d'advection chaotique laminaire [9, 10]. Le mélange est alors assuré par une succession d'étirements et de repliements du fluide (transformation du boulanger). Toutefois, c'est la diffusion moléculaire qui joue le rôle final d'homogénéisation du mélange. Abécassis *et al.* [1] ont montré, dans des

micro-canaux, que la présence de gradients de solutés pouvait considérablement modifier le comportement diffusif de grosses particules et ainsi améliorer de deux ordres de grandeur la diffusion effective de ces particules [7]. Ce phénomène, connu sous le nom de « diffusiophorèse » [2, 3], est comparable à celui de la chimiotaxie qui permet à une bactérie de se mouvoir en fonction des gradients de concentration pour se rapprocher de sa « nourriture ».

Le but de cette étude est de caractériser le comportement de grosses particules (colloïdes $\varnothing \simeq 250$ nm) en présence de solutés (ici du chlorure de lithium) dans une cellule de Hele-Shaw. Nous nous intéressons aux cas suivants :

- l’injection de particules dans de l’eau salée (hyperdiffusion) ;
- l’injection de particules dans de l’eau pure ;
- l’injection simultanée de particules et de sel dans de l’eau (tout devrait se dérouler comme si nous étions en présence d’une diffusion négative!).

Les colloïdes sont marqués à la fluorescéine. Nous pouvons mesurer l’évolution de leur concentration dans la cellule par une méthode de *PLIF* (*Planar Laser-Induced Fluorescence*). Les particules étant soumise à la fois à l’advection par l’écoulement et à la diffusion, les caractéristiques du mélange dépendent du nombre de Péclet Pe :

$$Pe = \frac{UL}{D} \quad (1)$$

où L est la longueur caractéristique de la cellule, U la vitesse du fluide et D le coefficient de diffusion dans l’eau de l’espèce étudiée. Il est donc possible de faire varier ce nombre sans dimension soit en modifiant la vitesse de l’écoulement U , soit en changeant d’espèce ($D_{Fluo} \simeq 4.10^{-10}$ m².s⁻¹, $D_{Colloïde} \simeq 2.10^{-12}$ m².s⁻¹). L’ajout de sel dans notre mélange pourrait modifier la mobilité de nos colloïdes, nous cherchons donc à remonter à un coefficient de diffusion effectif en présence de gradients salins.

2 Dispositif expérimental

Le domaine d’étude est une cellule de Hele-Shaw de dimensions $50 \times 50 \times 4$ mm³ (Figure 1a) alimentée par quatre entrées/sorties reliées à deux pompes péristaltiques (Figure 1b). Le mélange par advection chaotique est assuré par un protocole périodique en temps [9] (Figure 1c). L’écoulement obtenu est quasi bi-dimensionnel (profil parabolique selon z). À $t = 0$, on injecte une espèce fluorescente par la voie 1 à l’aide d’un pousse-seringue. On suit ensuite les déformations de la tache dans un plan laser réalisé à l’aide d’un laser continu (Coherent Genesis MX SLM-Series, $\lambda = 488$ nm) et de deux lentilles cylindriques qui permettent d’obtenir une épaisseur de nappe inférieure à 350 μ m. L’émission fluorescente est filtrée par un filtre *notch* ($\lambda_{notch} = 488 \pm 12$ nm) et l’évolution du champ scalaire est suivie tous les quarts de cycle à l’aide d’un appareil photographique 14 bit (Nikon D700, 4200 px \times 2800 px) équipé d’un zoom optique. Le grandissement des images est d’environ 20 μ m.px⁻¹. Une calibration des différentes espèces fluorescentes a révélé un comportement linéaire entre l’intensité lumineuse et la concentration de l’espèce sur toute la gamme étudiée.

3 Résultats

Nous cherchons ici à caractériser l’échelle de la plus petite structure du champ scalaire, à savoir l’échelle de Batchelor. Différentes méthodes d’analyse ont été mises en place.

3.1 Décroissance du champ scalaire

Dans un premier temps, la décroissance du champ scalaire est étudiée par le biais de la variance de la concentration σ_θ (linéaire avec l’intensité lumineuse).

$$\sigma_\theta = \sqrt{\langle (\theta - \langle \theta \rangle)^2 \rangle} \quad (2)$$

La Figure 2 montre l’évolution au cours du temps t de la variance d’un scalaire de fluorescéine et de colloïdes. Des « oscillations » sont visibles sur chaque courbe. Ce comportement reflète le fait qu’à

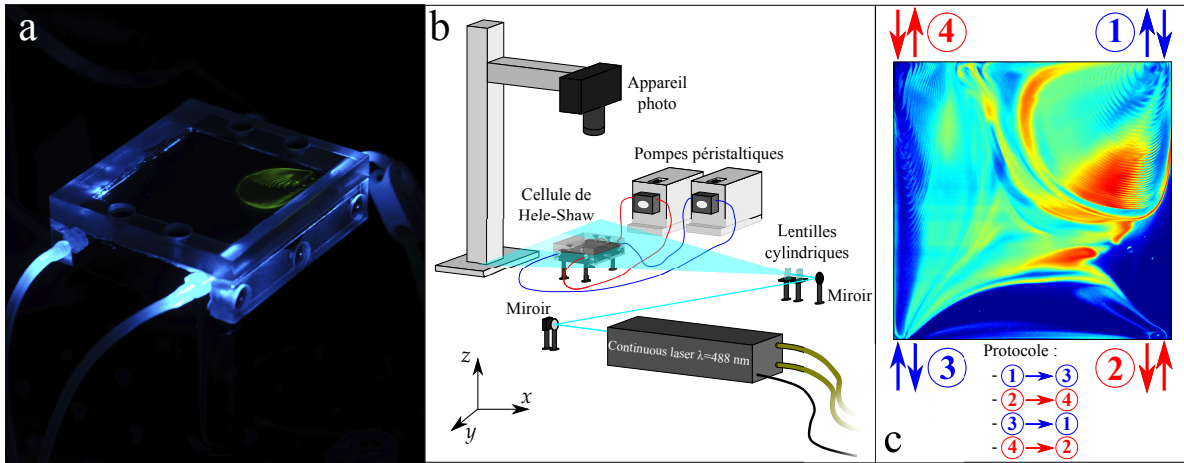


FIGURE 1 – a : cellule de Hele-Shaw. b : dispositif expérimental. c : protocole de mélange chaotique.

chaque $1/4$ de cycle, une quantité différente de scalaire est présente dans la cellule. Il s'agit en effet d'un système ouvert où du fluide coloré sort et entre à chaque $1/4$ de cycle. La variance σ_θ diminue rapidement jusqu'à atteindre une valeur minimum. Toutefois, on constate très peu de différence entre la courbe de la fluorescéine et celles des colloïdes malgré un grand écart du coefficient de diffusion. Ceci laisse présager que l'analyse de la décroissance du champ scalaire ne fait pas un bon candidat pour distinguer un comportement diffusif distinct entre différentes espèces utilisées dans cette étude et encore moins pour quantifier un coefficient de diffusion effectif créé par la présence de gradients salins. Une autre analyse est donc nécessaire.

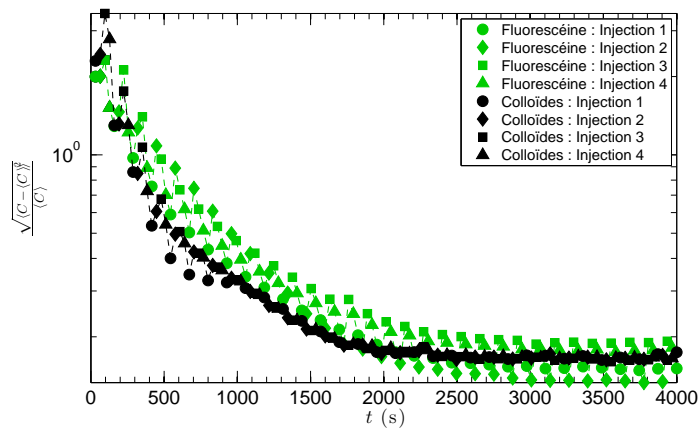
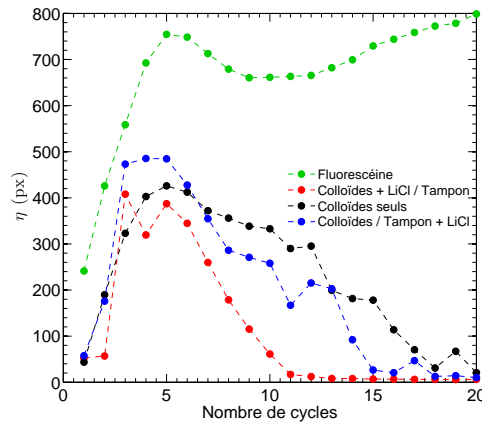


FIGURE 2 – Évolution de la variance d'un scalaire σ_θ de fluorescéine et de colloïdes au cours du temps t .

3.2 Méthode de floutage

La méthode de floutage des champs scalaires (*coarse graining*) est inspirée des travaux de Villermaux et Duplat [12]. Elle repose sur un lissage progressif des champs de concentration à différentes échelles. Pour chaque échelle, une variance de l'image floutée est calculée jusqu'à obtention d'une variance relative égale 0,5. Ceci permet de remonter à une échelle de mélange η , associée à un coefficient de diffusion effectif pour l'espèce en question.

Pour se donner une référence, nous avons tracé l'échelle de floutage η pour de la fluorescéine, qui diffuse plus que les colloïdes avec ou sans sel. On observe bien (Figure 3) que la courbe correspondante est

FIGURE 3 – Évolution de l'échelle de floutage η dans la cellule de Hele-Shaw.

au-dessus des trois autres. Dans le cas idéal, on s'attend à ce que la courbe noire correspondant aux colloïdes seuls soit encadrée par la courbe hyperdiffusive bleue au-dessus et par la courbe hypodiffusive rouge en dessous.

Dans la pratique, si la courbe noire est effectivement entre les deux autres pendant les 7 premiers cycles, cela n'est plus vrai aux temps plus longs. Ces résultats préliminaires tendent à indiquer que le moteur du phénomène de diffusiophorèse disparaît lorsque le sel se trouve mélangé dans toute la cellule, ce qui semble assez logique. Ceci ne serait toutefois pas forcément le cas si l'on considérait une bactérie qui, en mangeant le nutriment, recréerait naturellement des gradients de solutés.

3.3 Spectres d'énergie des champs scalaires

La question se pose alors de savoir si le coefficient de diffusion effectif (donc global) reflète réellement la physique d'une particule avec un coefficient de diffusion différent, c'est-à-dire, agissant à chaque échelle comme une diffusion simple. Pour y répondre, nous allons d'abord caractériser le mélange dans la cellule grâce aux spectres d'énergie 2D des champs scalaires $E_k(k)$, pour du mélange avec fluorescéine ou avec des colloïdes sans influence du sel dans un premier temps (Figure 4). On s'attend, dans ce cas, à ce que le mécanisme qui amène des grandes aux petites échelles dissipatives soit analogue à celui qui, en turbulence, conduit le champ scalaire de l'échelle de Kolmogorov à celle de Batchelor [8]. Les spectres de scalaires sont corrigés avec une méthode de fenêtrage de type Hanning et normalisés par leur intégrale. Ils sont présentés sur la Figure 4a.

On constate que plus le nombre de Péclet Pe est petit (c'est à dire que plus le mélange est diffusif), plus l'énergie scalaire est contenue dans les plus petits k (donc les grandes échelles). Pour ce type d'écoulement, les études théoriques et numériques prédisent un comportement global du spectre $E_k(k)$ en $Pe^{-\frac{1}{2}}$ [4] couplé avec un comportement en loi puissance aux grandes échelles et une décroissance exponentielle aux petites échelles [11]. On retrouve ce comportement sur nos spectres : en introduisant un nombre d'onde sans dimension $k^* = kL$, nous pouvons projeter les spectres sur une même courbe maîtresse d'équation (Figure 4b) :

$$E_k(k^*) Pe^{\frac{1}{2}} = 50 \left(k^* Pe^{-\frac{1}{2}} \right)^{-1} e^{-\frac{3}{2} \left(k^* Pe^{-\frac{1}{2}} \right)} \quad (3)$$

Cependant, les spectres de mélange des colloïdes obtenus avec du sel ne coïncident pas avec cette loi et nous permettent donc pas de remonter à un coefficient de diffusion effectif. Ceci amène à penser que le mécanisme de diffusiophorèse est bien plus complexe qu'une simple diffusion agissant de la même manière à toutes les échelles. Une étude plus locale des fronts semble donc nécessaire.

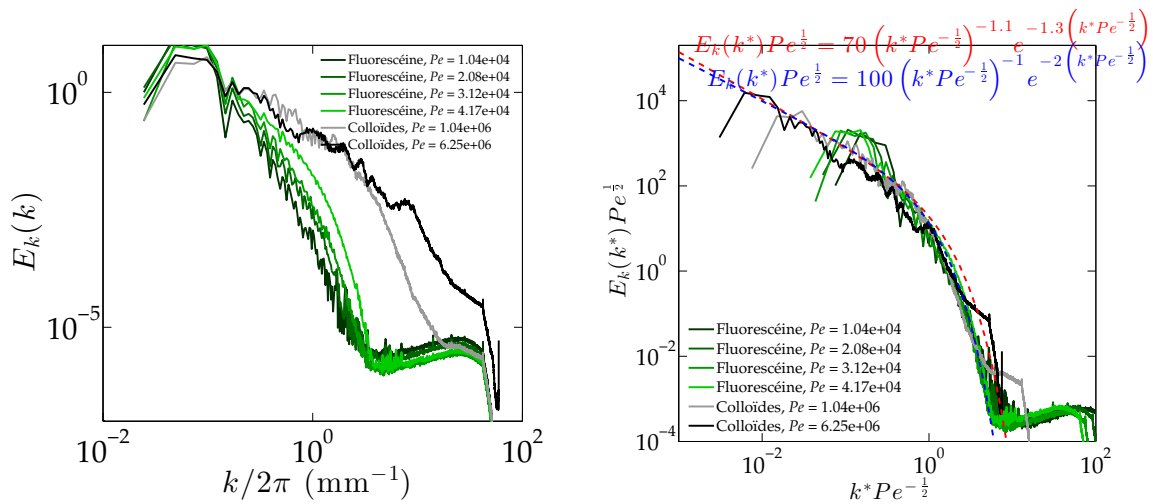


FIGURE 4 – a : comparaison de différents spectres en absence de sel. b : spectres recalés $E_k(k^*)Pe^{\frac{1}{2}}$ en fonction de $k^*Pe^{-\frac{1}{2}}$.

3.4 Analyse des fronts de concentration

Pour étudier les fronts de concentration, nous avons utilisé un objectif plus gros permettant d'atteindre un grandissement de $8 \mu\text{m}.\text{px}^{-1}$. Seule une partie de la cellule peut être observée dans cette configuration. Les colloïdes sont injectés avec ou sans sel et dans de l'eau salée ou non.

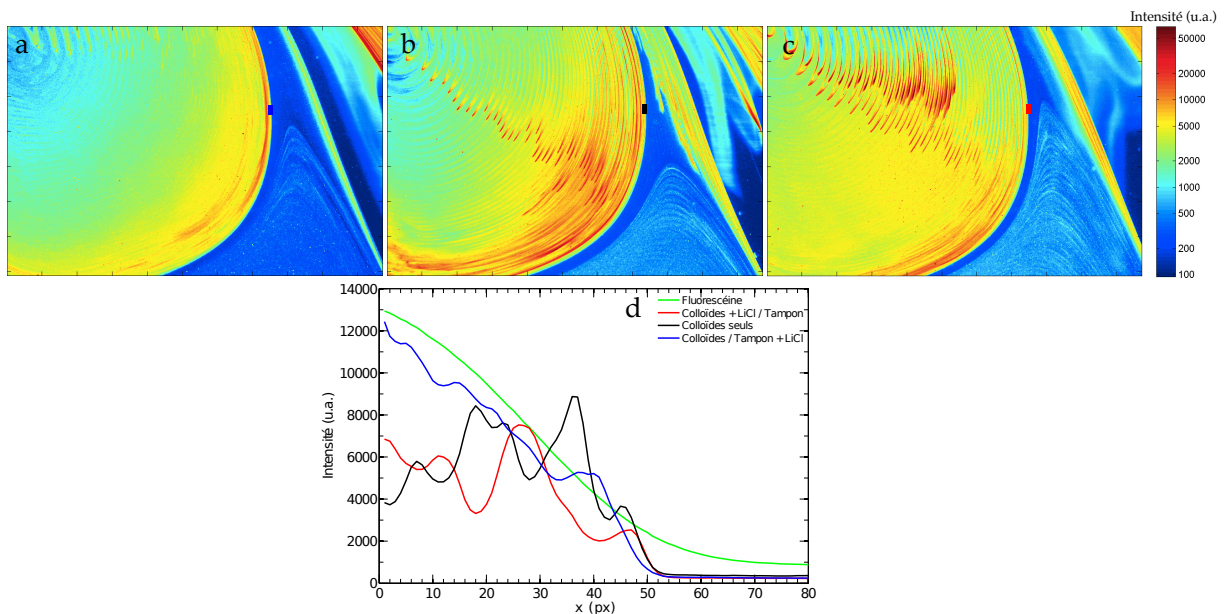


FIGURE 5 – a : colloïdes injectés dans de l'eau salée. b : colloïdes injectés dans de l'eau pure. c : colloïdes injectés avec du sel. d : Comparaison des fronts de concentration moyennés sur la hauteur de la zone d'étude (rectangles bleu, noir et rouge des figures a, b et c respectivement).

Sur la Figure 5, on voit, pour un même état d'avancement du mélange, le champ de concentration pour les trois configurations. À l'œil déjà, on a une impression de « flou » plus important dans le cas a (hyperdiffusion). En revanche, on note peu de différences entre le cas b et c. Cette observation semble confirmée par l'analyse des fronts de concentration (Figure 5d). Le front bleu, correspondant au cas le plus diffusif, est plus étalé que le front noir (cas de référence) et que le rouge (cas le moins diffusif). En revanche, on distingue peu de différence entre le cas de référence et le cas le moins diffusif.

4 Conclusions

Nous avons cherché à caractériser le phénomène de diffusiophorèse dans une cellule de Hele-Shaw. Nous expliquons d'abord que, comme nous travaillons avec un système ouvert, l'analyse de la décroissance du champ scalaire n'est pas un bon indicateur pour mesurer les effets diffusifs. En revanche, la méthode de floutage (*coarse graining*) montre aux temps courts une échelle de mélange diminuée (donc une diffusion effective augmentée) dans le cas de colloïdes injectés dans de l'eau salée. Le phénomène disparaît aux temps longs, lorsque le sel est mélangé dans la cellule. Pour aller plus loin et voir si la diffusiophorèse agit globalement comme un coefficient de diffusion augmenté ou diminué à chaque échelle, nous avons caractérisé le mélange dans la cellule par une analyse spectrale. Cependant, les spectres de colloïdes avec soluté ne se projettent pas sur les spectres de simple scalaire diffusif. Enfin, une analyse préliminaire des fronts de concentration montre encore un net effet dans le cas de colloïdes injectés dans l'eau salée mais le cas de colloïdes avec sel injectés dans l'eau pure ne montre pas l'effet hypodiffusif supposé.

Références

- [1] Abécassis, B. and Cottin-Bizonne, C. and Ybert, C. and Ajdari, A. and Bocquet, L. 2008 Boosting migration of large particles by solute contrasts *Nature materials* **7**(10) 785-789
- [2] Derjaguin, B.V. and Sidorenko, G.P. and Zubashenko, E.A. and Kiseleva, E.B. 1947 Kinetic phenomena in boundary films of liquids *Kolloid Zh.* **9**(5) 335-348
- [3] Ebel, J.P. and Anderson, J.L. and Prieve, D.C. 1988 Diffusiophoresis of latex particles in electrolyte gradients *Langmuir* **4**(2) 396-406
- [4] Kraichnan, R. H. 1974 Convection of a passive scalar by a quasi-uniform random straining field *J. Fluid Mech* **64**(4) 737
- [5] Lang, I., Scholz, M., and Peters, R. 1986 Molecular mobility and nucleocytoplasmic flux in hepatoma cells *The Journal of cell biology* **102**(4) 1183-1190
- [6] Machicoane, N. 2011 Étude de la signature de la diffusion dans un jet turbulent *Rapport de stage – École Normale Supérieure de Lyon*
- [7] Palacci, J., Abécassis, B., Cottin-Bizonne, C., Ybert, C., Bocquet, L. 2010 Colloidal motility and pattern formation under rectified diffusiophoresis *Physical review letters* **104**(13) 138302
- [8] Pierrehumbert, R. T. 1994 Tracer microstructure in the large-eddy dominated regime *Chaos, Solitons & Fractals* **4**(6) 1091-1110
- [9] Raynal, F. and Beuf, A. and Plaza, F. and Scott, J. and Carrière, P. and Cabrera, M. and Cloarec, J-P. and Souteyrand, É. 2007 Towards better DNA chip hybridization using chaotic advection *Physics of Fluids* **19** 017112
- [10] Stroock, A. D. and Dertinger, S. K. W. and Ajdari, A. and Mezić, I. and Stone, H. A. and Whitesides, G. M. 2002 Chaotic mixer for microchannels *Science* **295** 647-651
- [11] Toussaint, V. and Carriere, P. and Scott, J. and Gence, J-N. 2000 Spectral decay of a passive scalar in chaotic mixing *Physics of Fluids* **12** 2834
- [12] Villiermaux, E. and Duplat, J. 2006 Coarse grained scale of turbulent mixtures *Physical review letters* **97**(12) 144506
- [13] Williams, B. S. and Marteau, D. and Gollub, J-P. 1997 Mixing of a passive scalar in magnetically forced two-dimensional turbulence *Physics of Fluids* **9**(7) 2061-2080