

N° d'ordre : 2623

# THÈSE

présentée à

## L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGENIEUR

par **Ollivier TAMARIN**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

### DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : ELECTRONIQUE

\*\*\*\*\*

### ETUDE DE CAPTEURS A ONDES DE LOVE POUR APPLICATIONS EN MILIEU LIQUIDE. CAS DE LA DETECTION DE BACTERIOPHAGES EN TEMPS REEL

\*\*\*\*\*

Soutenue le 20 décembre 2002

Après avis de :

**MM.** O. BONNAUD  
F. J. JOSSE

Professeur, IETR Université Rennes  
Professeur, Marquette University (Milwaukee)

**Rapporteur**  
**Rapporteur**

Devant la commission formée de :

**MM.** O. BONNAUD  
F. J. JOSSE  
J. H. BEZIAN  
A. TOUBOUL  
**Mme** N. JAFFREZIC-RENAULT  
**M.** J. PISTRE  
**Mme** C. DEJOURS  
**M.** D. REBIERE

Professeur, IETR Université Rennes  
Professeur, Marquette University (Milwaukee)  
Professeur Emérite, Université Bordeaux 2  
Professeur, Université Bordeaux 1  
Directeur de Recherche au CNRS, Ecole centrale Lyon  
Professeur, ENSEIRB Université Bordeaux 1  
Maître de Conférences, Université Bordeaux 1  
Maître de Conférences, IUT A, Université Bordeaux 1

**Rapporteur**  
**Rapporteur**  
**Président**  
**Examineur**  
**Examineur**  
**Examineur**  
**Invité**  
**Invité**



*A mes parents, ma famille*

*A Marilyne,  
Merci pour ta compréhension,  
ta patience, ta confiance...*

*A mes amis*



## Remerciements

Les travaux présentés dans ce mémoire se sont déroulés principalement au sein du Laboratoire d'Etude de l'Intégration des Composants et Systèmes Electroniques (IXL) UMR 5818 CNRS, ENSEIRB, Université Bordeaux 1, ainsi qu'au Laboratoire d'Immunologie Moléculaire et Parasitologie (LIMP), Université Victor Segalen Bordeaux 2 pour l'ensemble des tests de détection immunologique. Je souhaite ici remercier les nombreuses personnes qui ont contribué à l'élaboration de ces travaux.

Je remercie tout d'abord vivement Monsieur André TOUBOUL, Professeur et Directeur du Laboratoire IXL, pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire IXL et pour avoir accepté d'être membre de ce jury.

Que Monsieur Fabien J. JOSSE, Professeur, Electrical, Computer and Biomedical Engineering Department à Marquette University (Milwaukee - Wisconsin), trouve ici l'expression de ma pleine reconnaissance pour l'honneur qu'il me fait en acceptant la charge de rapporteur de cette thèse, et pour sa présence au sein de ce jury.

Je tiens à remercier vivement Monsieur Olivier BONNAUD, Professeur à l'Université de Rennes, pour le privilège qu'il me fait en ayant accepté d'examiner cette thèse en qualité de rapporteur. Qu'il trouve ici l'expression de mes sincères remerciements pour sa présence au sein de ce jury.

Je témoigne également ma pleine reconnaissance à Monsieur Jean H. BEZIAN, Professeur Emérite et Directeur de l'équipe d'Immunologie Moléculaire du LIMP de l'université Victor Segalen Bordeaux 2, pour m'avoir accueilli et avoir encouragé mes travaux au sein de son équipe, et pour avoir accepté de participer à ce jury.

Je suis particulièrement reconnaissant à Madame Nicole JAFFREZIC-RENAULT, Directeur de Recherche au Laboratoire Ingénierie et Fonctionnalisation des Surfaces (Ecole Centrale de Lyon) et Présidente du Club MicroCapteurs Chimiques, de l'intérêt qu'elle manifeste pour ce travail, notamment en participant à ce jury.

J'adresse mes très sincères remerciements à Monsieur Jacques PISTRE, Professeur à l'ENSEIRB (Bordeaux), pour la confiance qu'il m'a accordée en dirigeant ces travaux de recherches, et qui a toujours veillé au bon déroulement de cette thèse.

Je remercie très vivement Madame Corinne DEJOURS, Maître de Conférences à l'Université Bordeaux 1. Elle n'a pas ménagé son temps et son énergie afin de s'investir dans ce travail. Sa disponibilité, son efficacité, et sa grande rigueur de tous les jours ont largement contribué à la réalisation de ces travaux, ainsi qu'à la rédaction de cette thèse.

Je suis sincèrement reconnaissant envers Monsieur Dominique REBIERE, Maître de Conférences à l'Université Bordeaux 1, pour ses conseils tout au long de la thèse et aussi pour son aide précieuse lors de la rédaction de ce mémoire. Je tiens également à le remercier pour son soutien permanent et entier concernant mes projets aussi bien professionnels que personnels.

Mes remerciements vont aussi à Monsieur Daniel MOYNET, Maître de Conférences à l'Université Bordeaux 2, et à Madame Sylvie FAIDERBE-COMEAU, Ingénieur au LIMP, pour leurs conseils, et leurs travaux dans le domaine immunologique. Ils n'ont pas ménagé leur temps afin de faciliter les échanges et la communication entre «immunologistes» et «électroniciens».

Que Madame Isabelle DUFOUR, Chargée de Recherche au CNRS, trouve ici toute ma reconnaissance pour son aide, sa disponibilité, et ses conseils.

J'exprime toute ma gratitude à Madame Nicole LAVIGNE, pour sa grande habileté qui a permis d'effectuer des travaux très soignés et très précis sur les capteurs. Son absence durant la dernière année de cette thèse s'est durement faite ressentir. Je ne saurais oublier, Messieurs Patrick BERENGUER et Serge DESTOR pour leur disponibilité, leur sympathie et le sérieux de leur travail.

Je remercie également Messieurs Régis DEVREESE et Patrick VILLESUZANE pour leur disponibilité en tant qu'ingénieur système.

J'exprime mes remerciements à Mesdames Elisabeth DRILLON, Mireille BERNARD, Valérie CAUHAPE et Valérie DUCASSE, pour leur aide précieuse et le travail qu'elles effectuent quotidiennement.

J'adresse aussi mes remerciements à Madame Alice TEA, pour sa grande gentillesse, sa serviabilité et son dévouement.

:

Je remercie les thésards et membres du groupe «Capteurs Microsystèmes » pour la bonne entente générale, et les conversations scientifiques passionnées et fructueuses. Je pense notamment à Céline ZIMMERMANN, Catherine BERNOU, Ludivine FADEL, Cyril HAINAULT, Jean-Luc LACHAUD, Pierre MAZEIN, Florence RAZAN et Philippe PAILLE.

Enfin, j'adresse mes remerciements à l'ensemble des thésards et des personnels du Laboratoire IXL pour la bonne entente qui y règne, en particulier Alexandrine, Benoît, Eric, Frédéric, Marie Pascale et Pierre.





## TABLE DES MATIERES

<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>15</b>
<b>CHAPITRE I SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE .....</b>	<b>21</b>
I.1 LES ONDES ACOUSTIQUES, GÉNÉRALITÉS .....	23
<i>I.1.1 Génération des ondes acoustiques, principe de détection.....</i>	<i>23</i>
<i>I.1.2 Les différents types de capteurs.....</i>	<i>26</i>
<i>I.1.3 Cellules en milieu liquide .....</i>	<i>32</i>
I.2 DISPOSITIFS À ONDES DE LOVE EN MILIEU LIQUIDE.....	35
<i>I.2.1 Les différents types de dispositifs réalisés .....</i>	<i>35</i>
<i>I.2.2 Caractérisation de milieux liquides.....</i>	<i>38</i>
<i>I.2.3 Biocapteurs à ondes de Love.....</i>	<i>43</i>
<i>I.2.4 Synthèse : les dispositifs à ondes de Love dans le monde .....</i>	<i>47</i>
I.3 CONCLUSION .....	49
<b>CHAPITRE II MODELISATION D'UNE STRUCTURE MULTICOUCHE A ONDES DE LOVE .....</b>	<b>51</b>
II.1 MODÈLE MULTICOUCHE.....	53
<i>II.1.1 Choix des matériaux, paramètres physiques .....</i>	<i>53</i>
<i>II.1.2 Equations régissant la propagation des ondes acoustiques.....</i>	<i>55</i>
<i>II.1.3 Conditions aux limites .....</i>	<i>64</i>
II.2 RÉOLUTION ANALYTIQUE.....	65
<i>II.2.1 Modèle trois couches (quartz, SiO<sub>2</sub>, liquide).....</i>	<i>66</i>
<i>II.2.2 Modèle quatre couches (quartz, SiO<sub>2</sub>, couche sensible, liquide).....</i>	<i>72</i>
<i>II.2.3 Discussion sur la résolution analytique .....</i>	<i>75</i>
II.3 RÉOLUTION NUMÉRIQUE.....	76
<i>II.3.1 Principe de la résolution numérique, et discussion.....</i>	<i>76</i>
II.4 CONCLUSION .....	80

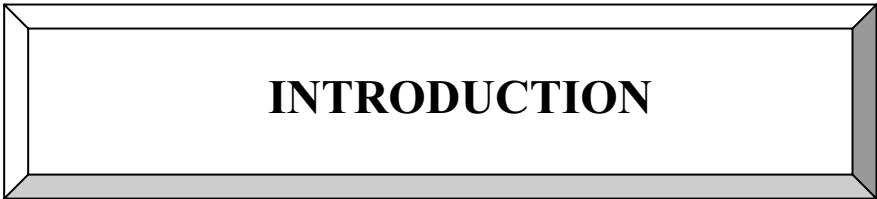
<b>CHAPITRE III RESULTATS THEORIQUES .....</b>	<b>81</b>
III.1 COMPARAISON DES RÉOLUTIONS ANALYTIQUES ET NUMÉRIQUES .....	83
III.2 INFLUENCE DU LIQUIDE DE TEST SUR LA LIGNE À RETARD NUE.....	86
<i>III.2.1 Influence des paramètres mécaniques .....</i>	<i>86</i>
<i>III.2.2 Influence des paramètres électriques du liquide.....</i>	<i>91</i>
<i>III.2.3 Comparaison de l'influence des paramètres mécaniques et électriques.....</i>	<i>95</i>
III.3 INFLUENCE DES PARAMÈTRES DU CAPTEUR EN MODE DÉTECTION DE POLLUANTS .....	96
<i>III.3.1 Influence de la présence de la couche sensible en milieu liquide .....</i>	<i>97</i>
<i>III.3.2 Sensibilité gravimétrique.....</i>	<i>98</i>
III.4 CONCLUSION .....	104
<b>CHAPITRE IV MISE EN ŒUVRE ET CARACTERISATION DES SYSTEMES A ONDES DE LOVE EN MILIEU LIQUIDE.....</b>	<b>107</b>
IV.1 DISPOSITIFS À ONDES DE LOVE ET BANC DE TEST .....	109
<i>IV.1.1 Le dispositif à ondes de Love et sa mise en œuvre en milieu liquide.....</i>	<i>110</i>
<i>IV.1.2 Le banc de test.....</i>	<i>117</i>
IV.2 CARACTÉRISATIONS EN MILIEU LIQUIDE.....	121
<i>IV.2.1 Généralités sur les caractérisations en milieu liquide.....</i>	<i>121</i>
<i>IV.2.2 Influence de la viscosité : caractérisation en mode « variation de viscosité » ..</i>	<i>124</i>
<i>IV.2.3 Influence de la viscosité : caractérisation en mode « viscosimètre » .....</i>	<i>130</i>
<i>IV.2.4 Influence des paramètres électriques : caractérisation en mode «variation de conductivité » .....</i>	<i>133</i>
IV.3 CONCLUSION .....	136
<b>CHAPITRE V APPLICATION A LA DETECTION EN MILIEUX LIQUIDE.....</b>	<b>139</b>
V.1 MODÈLE BIOLOGIQUE.....	141
<i>V.1.1 Généralités.....</i>	<i>141</i>
<i>V.1.2 Interaction antigènes – anticorps.....</i>	<i>142</i>
<i>V.1.3 Choix du modèle couche sensible-polluant .....</i>	<i>142</i>

V.2	LA COUCHE SENSIBLE D'ANTICORPS .....	144
V.2.1	<i>Greffage de la couche sensible sur la surface du capteur</i> .....	144
V.2.2	<i>Validation du greffage de la couche sensible</i> .....	146
V.2.3	<i>Conclusion</i> .....	151
V.3	APPLICATION À LA DÉTECTION DE BACTÉRIOPHAGES .....	151
V.3.1	<i>Protocole d'immobilisation du bactériophage sur la couche sensible</i> .....	152
V.3.2	<i>Validation biologique de l'immobilisation : titration des bactériophages</i> .....	153
V.3.3	<i>Détection acoustique du bactériophage</i> .....	154
V.4	DISCUSSION, AMÉLIORATION DES DÉTECTIONS.....	159
V.4.1	<i>Problèmes rencontrés lors des détections</i> .....	159
V.4.2	<i>Améliorations du système</i> .....	162
V.5	CONCLUSION. ....	165
	<b>CONCLUSION .....</b>	<b>167</b>
	<b>ANNEXES .....</b>	<b>173</b>
	<b>Annexe A Les ondes acoustiques utilisées pour des applications capteur</b> .....	<b>175</b>
A.1	LES ONDES DE SURFACE.....	177
A.1.1	<i>Les ondes de Rayleigh</i> .....	177
A.1.2	<i>Les ondes de Bleustein Gulyaev</i> .....	178
A.2	LES ONDES DE PLAQUES .....	178
A.2.1	<i>Les ondes transverses horizontales à mode de plaque (SH-APM)</i> .....	178
A.2.2	<i>Les ondes de Lamb</i> .....	179
	<b>Annexe B Analyse tensorielle .....</b>	<b>181</b>
B.1	ANALYSE MÉCANIQUE.....	183
B.1.1	<i>Tenseur des contraintes</i> .....	183
B.1.2	<i>Tenseur des déformations</i> .....	183
B.1.3	<i>Relation entre contraintes et déformations</i> .....	184

B.2	CONTRACTION DES TENSEURS.....	185
B.3	ANALYSE ÉLECTROACOUSTIQUE.....	185
	<i>B.3.1 Propriété piézo-électrique d'un solide.</i> .....	185
	<i>B.3.2 Induction électrique.</i> .....	186
B.4	CALCUL D'UN PARAMÈTRE EN FONCTION DE LA COUPE CRISTALLOGRAPHIQUE DU SUBSTRAT.....	187
<b>Annexe C Constantes caractéristiques des matériaux utilisés .....</b>		<b>189</b>
C.1	MATÉRIAUX SOLIDES .....	191
	<i>C.1.1 Quartz</i> .....	191
	<i>C.1.2 SiO<sub>2</sub> amorphe</i> .....	192
	<i>C.1.3 Aluminium</i> .....	192
	<i>C.1.4 Polyméthylmétacrylate (PMMA)</i> .....	193
C.2	MATÉRIAUX LIQUIDES .....	193
	<i>C.2.1 Eau pure</i> .....	193
	<i>C.2.2 Solutions aqueuses de glycérol</i> .....	194
	<i>C.2.1 Solutions aqueuses de NaCl</i> .....	195
<b>Annexe D Champ électrique dans le liquide, formation de la « couche double ».....</b>		<b>197</b>
<b>Annexe E Compléments mathématiques.....</b>		<b>201</b>
E.1	RÉSOLUTION NUMÉRIQUE : MODÈLE MULTICOUCHE DANS LE CAS DES ONDES DE LOVE. ...	203
	.....	203
	<i>E.1.1 Généralités</i> .....	203
	<i>E.1.2 Modèle trois couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / vide)</i> .....	206
	<i>E.1.3 Modèle trois couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / liquide)</i> .....	207
	<i>E.1.4 Modèle quatre couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / couche sensible / vide)</i> .....	208
	<i>E.1.5 Modèle quatre couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / couche sensible / liquide)</i> .....	209

E.2	RÉSOLUTION ANALYTIQUE : SÉPARATION DES PARTIES RÉELLE, ET IMAGINAIRE DE $\text{ARCTAN}((-1+J)v)$ .....	210
	<b>Annexe F Programme d'acquisition du banc de test.....</b>	<b>211</b>
F.1	NÉCESSITÉ D'UNE ACQUISITION INFORMATIQUE.....	213
F.2	PRÉSENTATION DU PROGRAMME D'ACQUISITION.....	214
	<i>F.2.1 Configuration des paramètres d'acquisition.....</i>	<i>214</i>
	<i>F.2.2 Visualisation de l'acquisition.....</i>	<i>215</i>
	<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>	<b>217</b>
	<b>BIBLIOGRAPHIE DES ANNEXES.....</b>	<b>227</b>
	<b>LISTE DES ARTICLES, COMMUNICATIONS ET RAPPORTS PUBLIÉS SUR CES TRAVAUX .....</b>	<b>233</b>





**INTRODUCTION**





Ces dernières années, la demande de contrôles de qualités dans différents domaines (médical, environnement, agro-alimentaire), et de veilles (bio)chimiques pour la sécurité des populations n'a cessé de croître. Aussi, la recherche et le développement sur les capteurs chimiques et biochimiques est en plein essor.

Au sein de l'équipe « Capteur Microsystèmes » du laboratoire IXL, l'utilisation de lignes à retard à ondes élastiques (ou acoustiques) afin de réaliser des détections chimiques ou biochimiques a été privilégiée. Ce choix fut motivé par le fait que ces dispositifs présentent plusieurs avantages.

Tout d'abord, la fabrication des lignes à retard bénéficie de l'évolution de la technologie des filtres à ondes de surface (Surface Acoustic Wave ou SAW) qui sont utilisés dans le domaine des télécommunications.

Ensuite, leur petite taille permet de réaliser des appareils de mesure complets (dispositif de test, électronique intégrée et informatique de commande) dans un très faible encombrement, la ligne à retard étant un élément de mesure interchangeable, adaptable selon l'application. Ainsi un dispositif dédié portatif permettant des études in situ peut être conçu.

Les modifications quasiment instantanées des paramètres de propagation de l'onde acoustique lors de perturbations du système permettent de réaliser des détecteurs réagissant en temps réel.

Enfin, certains types de propagation offrent la possibilité de réaliser des détections aussi bien en milieu gazeux qu'en milieu liquide.

Les premiers travaux ont été initiés à l'IXL avec la thèse de Dominique Rebière, et concernaient la possibilité de réaliser des détections en milieu gazeux.

Depuis une dizaine d'années, l'équipe « Capteurs Microsystèmes » a acquis une grande expérience qui a permis de montrer les fortes potentialités des dispositifs à ondes acoustiques, et notamment des lignes à retard à ondes de Love, pour les détections en milieu gazeux. Le succès de ces premières études a poussé le groupe à relever le défi d'obtenir des résultats similaires en milieu liquide.

Les premières explorations dans ce domaine ont commencé avec la thèse de Corinne Déjous sur l'application des ondes transverses à modes de plaque (Shear Horizontal Acoustic Plate

Mode ou SH-APM) en milieux liquides. Les premiers résultats ne furent pas très significatifs et montrèrent une sensibilité insuffisante de ces dispositifs pour des applications à la détection.

Dans cette thèse, nous proposons d'apporter une contribution à l'étude de l'application en milieu liquide des dispositifs acoustiques. Nous nous focaliserons pour cela sur un type d'onde particulier, très prometteur : les ondes de Love. Leur grande sensibilité à l'effet de masse (paramètre prédominant lors des détections) a été démontré en milieu gazeux par la thèse de Céline Zimmermann. De plus leur polarisation transverse horizontale (TH) est tout à fait adaptée aux applications en milieux liquides.

Le chapitre I décrit les caractéristiques des lignes à retard à ondes élastiques, et le principe de fonctionnement des capteurs (bio)chimiques utilisant ces ondes. Puis nous présentons plus précisément les ondes de Love. Enfin un état de l'art sur l'utilisation des lignes à retard à ondes de Love pour des applications concernant la caractérisation de milieux liquides et les détections biochimiques est proposé.

Le deuxième chapitre présente une étude théorique permettant de déterminer les caractéristiques de propagation des ondes de Love en milieu liquide, notamment sa vitesse de phase (ou vitesse de propagation). Cette étude se base sur un modèle multicouche, et deux types de résolutions sont proposées. Tout d'abord, une résolution analytique permet de déterminer la vitesse de phase de l'onde en fonction de tous les paramètres mécaniques du système : ligne à retard, couche sensible, milieu de détection. Puis une résolution numérique, plus longue, permet de tenir compte de paramètres supplémentaires du système, notamment des variables électriques.

Dans le troisième chapitre nous présentons les résultats théoriques obtenus à partir de cette modélisation et des résolutions analytiques et numériques. Nous pouvons alors estimer les caractéristiques de propagation de l'onde de Love en fonction des différents paramètres de la ligne à retard et du milieu liquide de test. Cela nous permet d'évaluer la sensibilité à l'effet de masse du capteur qui joue un rôle déterminant parmi les mécanismes d'interaction mis en jeu lors d'une détection.

Le quatrième chapitre porte sur la réalisation et la mise en œuvre de dispositifs à ondes de Love en milieu liquide. Le banc de test et les méthodes de mesures sont décrits. Nous

pouvons ainsi caractériser expérimentalement l'influence des paramètres du liquide de test sur le dispositif , et conclure sur la validité du modèle théorique.

Enfin, le cinquième chapitre présente une application à la détection en milieu biologique liquide utilisant une ligne à retard à ondes de Love. Pour cela une réaction immunologique du type antigène – anticorps est utilisée, sur la base d'un modèle immunologique représentatif, et ainsi susceptible d'étendre l'étude à une grande variété d'applications. Notre biocapteur est ainsi constitué de la ligne à retard et d'une couche d'antigènes déposée sur la surface sensible, et la biomolécule à détecter est un bactériophage.

Les résultats obtenus sont analysés et permettent de conclure sur la faisabilité et l'intérêt de l'utilisation des dispositifs à ondes de Love pour effectuer des détections (bio)chimiques en milieu liquide.





**CHAPITRE I**  
**SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE**



## *1.1 Les ondes acoustiques, généralités*

L'utilisation des propriétés de propagation des ondes acoustiques afin de réaliser des micro capteurs d'espèces chimiques a débuté en 1959 avec les travaux de Sauerbrey [I-1] qui quantifie « l'effet de masse ». Depuis, l'intérêt des dispositifs à ondes acoustiques n'a cessé de se développer. Les deux principaux domaines d'applications dans lesquels ceux-ci sont utilisés sont les microcapteurs d'espèces (bio)chimiques, ainsi que l'étude des propriétés de milieux physiques (liquides et solides). Dans ce paragraphe, nous présentons le principe de détection des capteurs à ondes acoustiques, ainsi que certaines applications spécifiques, notamment en milieu liquide.

### *1.1.1 Génération des ondes acoustiques, principe de détection*

#### *1.1.1.a Génération des ondes acoustiques*

Les ondes acoustiques (ou élastiques), qui sont utilisées dans diverses applications se propagent dans des matériaux solides. Comme pour les ondes sonores, sous l'effet d'une perturbation mécanique, les molécules du milieu vont osciller autour de leur position d'équilibre, cette oscillation sera transmise de proche en proche sur une distance plus ou moins grande.

Un phénomène physique utilisé afin de pouvoir générer des ondes acoustiques est la piézoélectricité du solide. Les matériaux piézoélectriques ont la propriété de transformer un signal électrique en déformation mécanique et réciproquement. Ainsi, à l'aide d'électrodes, un champ électrique sinusoïdal est appliqué au matériau. L'alternance du signe de la tension électrique induit une alternance de compressions et de dilatations mécaniques dans le substrat. Une onde élastique est alors produite, et ses caractéristiques de propagation (polarisation, direction de propagation, amplitude, vitesses de phase et de groupe de l'onde) dépendent des caractéristiques du dispositif.

En particulier la nature du substrat piézoélectrique choisi (le quartz :  $\text{SiO}_2$ , ainsi que le tantalate de lithium :  $\text{LiTaO}_3$ , sont les plus utilisés dans ce domaine à ce jour), ainsi que la géométrie et l'orientation des électrodes par rapport aux axes cristallographiques, ont un rôle déterminant sur les caractéristiques des ondes générées dans la structure. Toutes les ondes

élastiques susceptibles de se propager sont des combinaisons de deux types d'ondes fondamentales :

- les ondes **longitudinales** ou "ondes de compression" (Figure I-1 a) : les particules oscillent parallèlement à la direction de propagation. L'onde apparaît comme une succession de compressions et de dilatations.
- les ondes **transversales** ou "ondes de cisaillement": les particules oscillent perpendiculairement à la direction de propagation. Il est toutefois important de distinguer les ondes de polarisation transverses verticale (Figure I-1 b) des ondes transverses horizontales (Figure I-1 c).

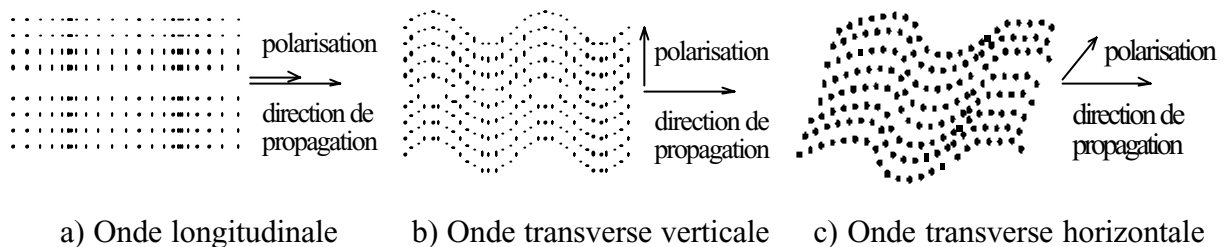


Figure I-1 : Déplacement des particules d'une onde élastique, d'après [I-7]

Pour une direction de propagation donnée  $\vec{T}$ , ces ondes sont caractérisées par les vecteurs déplacements (ou polarisation)  $\vec{U}_1$ ,  $\vec{U}_2$  et  $\vec{U}_3$ , respectivement associés à l'onde longitudinale, transverse horizontale et transverse verticale. Ces vecteurs sont orthogonaux entre eux (cf. Figure I-2).

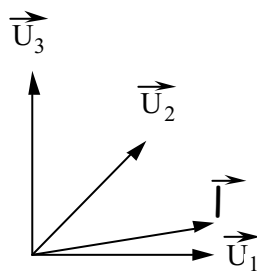


Figure I-2 : Vecteurs déplacements dans un milieu anisotrope illimité.

Dans le cas général, la direction de propagation  $\vec{T}$  fait un angle aigu avec le vecteur polarisation  $\vec{U}_1$  : on parle d'ondes quasi-longitudinales, et d'ondes quasi-transverses. Par contre, pour les milieux isotropes, ainsi que pour certaines coupes cristallographiques de matériaux anisotropes,  $\vec{T}$  et  $\vec{U}_1$  sont colinéaires : on parle d'ondes de polarisation pure.



### I.1.1.b Perturbation des ondes acoustiques, principe de détection

Un paramètre important pour les diverses applications des dispositifs à ondes acoustiques à la détection ou à la caractérisation de milieux, est la stabilité des paramètres de propagation, qui déterminera le seuil de détection du dispositif ou sa résolution. Ainsi, avec un dispositif stable, toute variation d'un ou plusieurs paramètres physico-chimiques extérieurs, modifiera les caractéristiques de propagation de l'onde. Il sera alors possible en discriminant et en étudiant l'influence de chacune des variables du système, de déterminer dans quelle mesure évolue le paramètre qui nous intéresse.

La détection d'espèces chimiques et biologiques est basée sur la mesure et l'interprétation de la modification des paramètres acoustiques de l'onde en présence de la quantité à mesurer. Le principe consiste à déposer à la surface du dispositif, une couche sensible et sélective à l'espèce que l'on souhaite détecter. L'onde acoustique peut alors se coupler partiellement dans cette couche sensible, cf. Figure I-3.

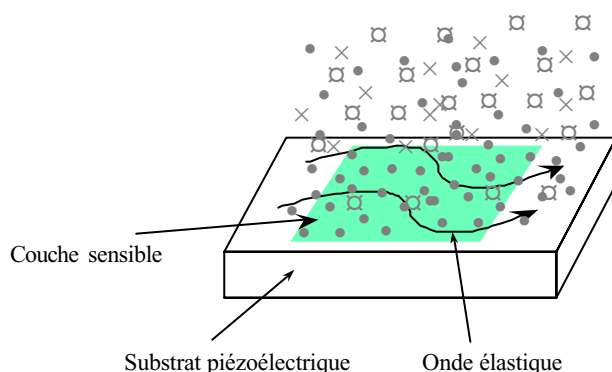


Figure I-3 : Principe du capteur (bio)chimique à ondes acoustiques.

L'espèce chimique cible réagit avec la couche sensible par différents types d'interactions que nous regroupons par le terme de sorption, cela induit notamment une augmentation de la masse de la couche qui est modélisée en première approximation par une augmentation de sa masse volumique. Sous certaines conditions, cet effet plus connu sous le nom d'**effet de masse** est prépondérant par rapport à l'influence des autres paramètres du système. L'étude des perturbations acoustiques qui résultent de l'effet de masse permet alors de déterminer la présence et la concentration de l'espèce chimique que l'on souhaite détecter. Nous définissons ainsi la sensibilité relative de la vitesse du capteur à l'effet de masse ( $S_{mv}$ ) en fonction de la variation de la vitesse de phase relative de l'onde avant et après sorption de l'espèce chimique cible :

$$S_{mv} = \frac{V_P - V_{P0}}{V_{P0}} \frac{1}{\Delta m}$$

avec  $V_P$  : vitesse de phase de l'onde après sorption ( $m.s^{-1}$ )  
 $V_{P0}$  : vitesse de phase de l'onde avant sorption ( $m.s^{-1}$ )  
 $\Delta m$  : accumulation de masse durant la sorption (kg)

En plus de l'utilisation des dispositifs à ondes acoustiques pour la détection d'espèces (bio)chimiques, diverses applications et/ou études de l'influence de différents paramètres physiques ne nécessitant pas obligatoirement de couche sensible ont été recensées dans la littérature et sont présentées sur la Figure I-4.

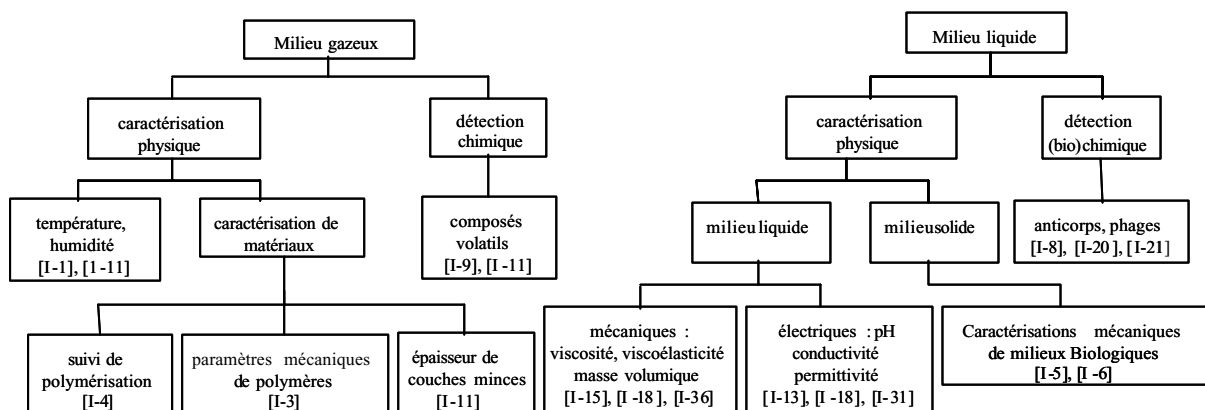


Figure I-4 : Applications des dispositifs à ondes acoustiques.

### 1.1.2 Les différents types de capteurs

Les dispositifs acoustiques étudiés diffèrent essentiellement par les multiples polarisations des ondes qui peuvent être générées. Nous présentons dans ce paragraphe les principaux types de capteurs utilisés en milieu liquide ; cette présentation est non exhaustive, un répertoire plus complet est donné en annexe A.

#### 1.1.2.a Les ondes de volumes

Les premiers dispositifs à ondes acoustiques réalisés ont été ceux utilisant des ondes de volume (Bulk Acoustic Waves, ou B.A.W.). Ces ondes sont générées dans le volume d'un

matériau piézoélectrique, à l'aide de deux électrodes placées de chaque côté du substrat de la plaque, cf. Figure I-5.

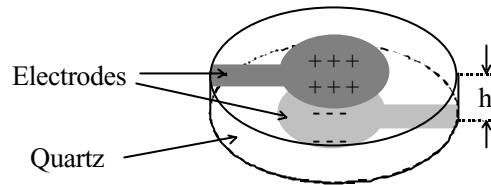


Figure I-5 : Balance à quartz.

Dans le cadre d'une application capteur, le dispositif utilisé est la balance à quartz (Quartz Crystal Microbalance, ou QCM) ou résonateur TSM (thickness shear mode). Il s'agit généralement d'un disque de quartz sur coupe AT d'épaisseur  $h$ , qui permet de générer des ondes de volume de polarisation transverse horizontale. De plus, la coupe AT permet de minimiser l'influence de la température sur la réponse du capteur. Une onde stationnaire de fréquence  $f$  est générée si la condition de résonance suivante est respectée [I-12] :

$$h = N \frac{\lambda}{2} \quad \text{et} \quad f = \frac{N}{2h} \sqrt{\frac{\mu}{\rho}}$$

$h$  : épaisseur de la plaque (m).

$\lambda$  : longueur d'onde (m).

$N$  : nombre entier naturel.

$\mu$  : module de rigidité transverse ( $\text{N.m}^{-2}$ ).

$\rho$  : masse volumique ( $\text{kg.m}^{-3}$ ).

Les fréquences de résonance de ces ondes sont de l'ordre de la dizaine de mégahertz ( $h \approx 100 \mu\text{m}$ ), voire une centaine de mégahertz dans certains cas [I-8]. Ces dispositifs permettent de réaliser des applications en milieu liquide et notamment de la détection biochimique.

### I.1.2.b Les ondes de surface

Lord Rayleigh [I-7] a mis en évidence un mode de propagation des ondes acoustiques où l'énergie est confinée à la surface d'un solide. Ces ondes sont connues sous le nom de Surface Acoustic Waves (SAW), ou ondes de Rayleigh.

Bien plus tard, R.M. White et W. Woltmer réalisèrent en 1965 la première ligne à retard. Cette configuration permet de générer les ondes de surface, et de maîtriser ses caractéristiques de propagation. Les ondes acoustiques sont générées et détectées par deux transducteurs interdigités (ou IDT) distants d'une longueur  $L_{cc}$ , et placés à la surface d'un matériau piézoélectrique. Cet ensemble est appelé ligne à retard, cf. Figure I-6. Les électrodes interdigitées permettent d'obtenir un retard important avec une très grande précision (quelques  $\mu s$  pour des vitesses de l'ordre du  $km.s^{-1}$ ).

La fréquence de l'onde générée dépend essentiellement de la nature et de l'orientation cristallographique du substrat piézoélectrique utilisé, et de la longueur d'onde (périodicité spatiale des électrodes interdigitées). Ce sont les premiers dispositifs étudiés au sein de l'équipe capteur du laboratoire IXL pour l'application des ondes acoustiques à la détection en milieu gazeux [I-9].

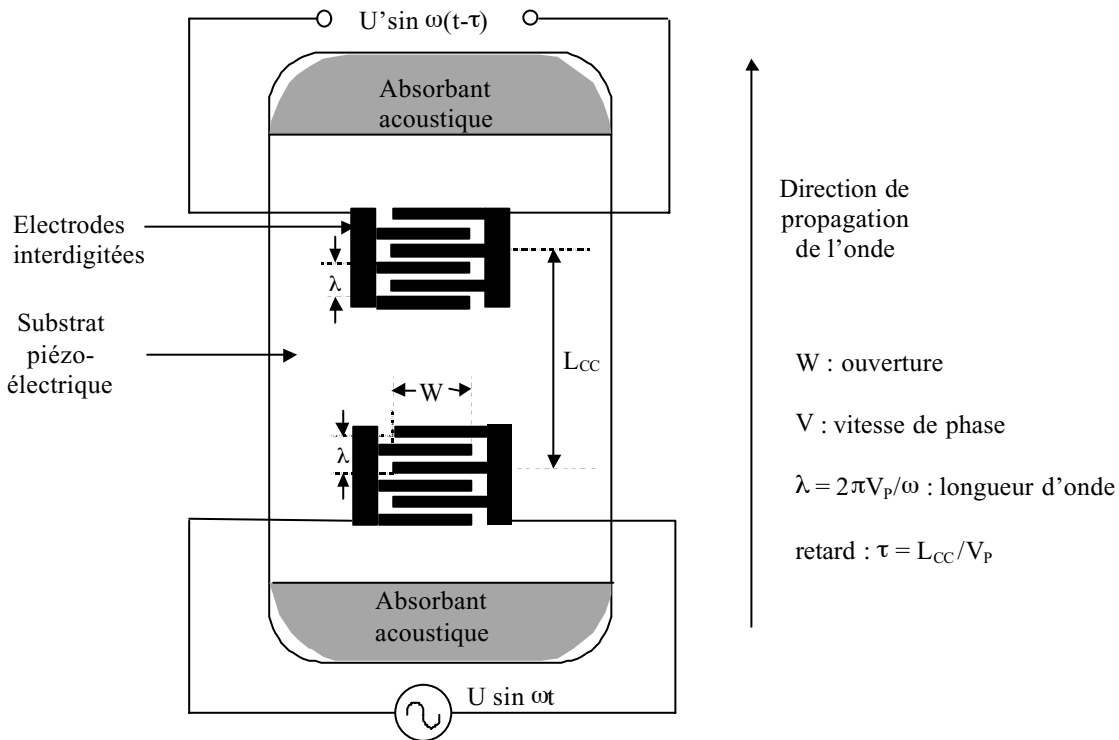


Figure I-6 : Ligne à retard à onde de surface.

Deux types d'ondes sont essentiellement utilisées dans le cadre d'applications à la détection ou à la caractérisation en milieu gazeux ou liquide.

La première est l'onde de Rayleigh, onde de surface dont la polarisation résulte de la superposition d'une composante transverse verticale, et d'une composante longitudinale déphasée de  $\pi/2$ .

La deuxième est la polarisation transverse horizontale T.H. Dans le paragraphe suivant, nous présentons un cas particulier des ondes de polarisation T.H., les ondes de Love.

I.1.2.c Les ondes dans un milieu inhomogène, cas des ondes de Love

Les ondes de Love ont une polarisation T.H. pure, qui peut être générée sous certaines conditions de symétrie. Par exemple dans le cas du quartz, les électrodes sont placées parallèlement à l'axe cristallographique X du substrat. Les ondes de Love sont générées par un substrat piézoélectrique monté en ligne à retard (cf. Figure I-7), et sont couplées sous certaines conditions dans une couche mince isotrope déposée en surface. Les déplacements acoustiques présentent une décroissance exponentielle dans le substrat, et quasiment toute l'énergie acoustique est confinée dans la couche. L'épaisseur typique de cette couche est de plusieurs micromètres.

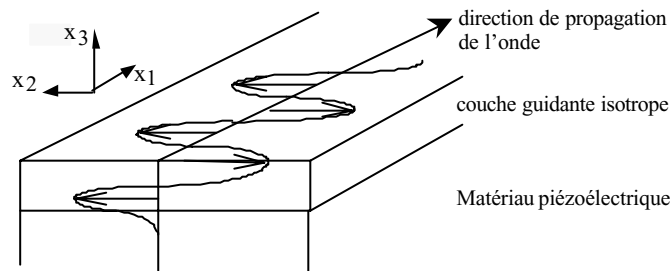


Figure I-7 : Polarisation d'une onde de Love.

Comme représenté sur la Figure I-7, l'onde de Love a une composante spatiale suivant l'axe  $x_2$ , et se propage suivant l'axe  $x_1$ . L'équation des déplacements de l'onde de Love (polarisation T.H. pure) dans un milieu sans pertes est donnée par la relation [I-7] :

$$U_2(x_1, x_3, t) = U_{02} e^{-jk_3 x_3} e^{j(\omega t - k_1 x_1)} \quad (I-1)$$

Si nous considérons un milieu ayant des pertes acoustiques, l'équation (I-1) devient :

$$U_2(x_1, x_3, t) = U_{02} e^{-\alpha_3 x_3} e^{-jk_3 x_3} e^{-\alpha_1 x_1} e^{j(\omega t - k_1 x_1)} \quad \Leftrightarrow$$

$$U_2(x_1, x_3, t) = U_{02} e^{-jk_3^* x_3} e^{j(\omega t - k_1^* x_1)} \quad (I-2)$$

avec  $k_i^* = k_i - j\alpha_i$  : la constante complexe de propagation sur l'axe  $x_i$  [I-7].

- $U_2$  : déplacement transverse horizontal (m)  
 $\alpha_3$  : coefficient d'atténuation suivant  $x_3$  ( $m^{-1}$ )  
 $k_3$  : vecteur d'onde suivant  $x_3$  ( $m^{-1}$ )  
 $\alpha_1$  : coefficient d'atténuation suivant  $x_1$  ( $m^{-1}$ )  
 $k_1$  : vecteur d'onde suivant  $x_1$  ( $m^{-1}$ )  
 $k_1 = \omega / V_P$  avec  $V_P$  : vitesse de phase de l'onde ( $m.s^{-1}$ )  
 $\omega$  : pulsation de l'onde ( $rad.s^{-1}$ )

### I.1.2.d Synthèse des applications

La diversité des ondes acoustiques, implique une multiplicité des caractéristiques des capteurs en termes de polarisation, sensibilité, fréquence de fonctionnement. Ainsi certaines structures seront privilégiées pour des applications spécifiques. En ce qui concerne l'application des ondes acoustiques pour des opérations en milieu liquide, le paramètre important et limitant est la polarisation de l'onde.

En effet des couplages viscoélastiques et électriques se font à l'interface solide / liquide. Une polarisation de l'onde qui implique des déplacements acoustiques ayant une composante verticale (perpendiculaire à la surface du capteur), entraîne de très forts couplages, et donc un rayonnement plus important de l'onde dans le liquide ; une grande partie de l'énergie acoustique est alors perdue tout au long de la propagation. Ainsi l'utilisation de dispositifs à onde de Rayleigh pour des applications en milieu liquide est très difficile voire impossible.

Par contre les dispositifs à ondes de polarisation T.H. sont tout à fait adaptés pour des applications en milieu liquide. Nous avons présenté dans le Tableau I-1 les principaux capteurs à ondes T.H., et leurs caractéristiques pour des applications à la caractérisation et à la détection en milieu liquide. Les caractéristiques de ces ondes sont exposées en annexe A.

Les dispositifs les plus utilisés en milieu liquide sont ceux où sont générées les ondes :

de volume T.S.M (thickness shear mode),

de Bleustein Gulyaev (ondes de surface TH),

SH-APM (shear horizontal - acoustic plate mode : ondes de plaque transverses horizontales),

Lamb,

de Love (onde TH guidée en surface).

	Fréquence de fonctionnement typique	Détection en milieu gazeux	Caractérisation physique de milieu liquide		Détection en milieu liquide	sensibilité à l'effet de masse
			paramètres mécaniques	paramètres électriques		
<b>Ondes de volume (T.S.M.)</b>	5 - 10 MHz	arômes [I-34]	viscosité [I-34]	conductivité électrique [I-34]	<sup>(1)</sup> bactériophages [I-8]	1,4 m <sup>2</sup> .kg <sup>-1</sup> [I-12]
<b>Ondes de Bleustein-Gulyaev</b>	50 - 100 MHz			conductivité électrique et pH. [I-14], [I-15]	<sup>(2)</sup> urée [I-15]	
<b>Ondes SH-APM</b>	120 - 150 MHz	composés organophosphorés [I-31]	viscosité [I-19]	conductivité et permittivité électriques [I-19]	<sup>(1)</sup> antigènes [I-39]	2 m <sup>2</sup> .kg <sup>-1</sup> [I-12]
<b>Ondes de Lamb (FPW)</b>	5 - 10 MHz	vapeurs de toluène [I-35]	viscosité, masse volumique [I-36]	conductivité électrique [I-38]	<sup>(1)</sup> Bactéries E. Coli [I-37]	44 m <sup>2</sup> .kg <sup>-1</sup> [I-12]
<b>Ondes de Love</b>	80 - 120 MHz	composés organophosphorés [I-11]	viscosité, masse volumique [I-16], [I-32]		<sup>(1)</sup> antigènes [I-22], [I-25]	30 m <sup>2</sup> .kg <sup>-1</sup> [I-11], [I-12]

<sup>(1)</sup> réaction du type anticorps / antigènes (ou bactériophage), détection de la variation de masse <sup>(2)</sup> réaction enzymatique, détection de la variation de pH

Tableau I-1 : Principaux dispositifs utilisés en milieu liquide et exemples typiques d'applications.

Dans ce mémoire, nous nous focaliserons sur les dispositifs à ondes de Love. En effet ils sont tout à fait adaptés au fonctionnement en milieu liquide, de plus comme nous le montre le Tableau I-1, leur très grande sensibilité pour la détection d'espèces chimiques a été démontrée en milieu gazeux [I-11]. Leur fréquence de fonctionnement (environ 100 MHz), voisine des fréquences des dispositifs précédemment étudiés au sein de l'équipe (SAW, SH-APM) nous permet d'utiliser une électronique existante.

Les ondes de Love font l'objet d'études depuis une dizaine d'années pour leurs applications à la caractérisation et à la détection en milieux liquides. Les seules applications de détection en milieux gazeux ont été présentés par l'équipe de Jakoby [I-10], et ont fait l'objet de la thèse de Céline Zimmermann [I-11].

### *1.1.3 Cellules en milieu liquide*

Une difficulté supplémentaire inhérente aux applications des capteurs en milieu liquide consiste à placer le liquide sur le chemin acoustique (surface sensible du capteur), tout en évitant tout contact entre le liquide et les connexions électriques. La géométrie de la cellule doit alors être adaptée au type de dispositif que l'on utilise. De plus, certains produits utilisés en particulier lors du dépôt d'une couche sensible sur le dispositif (acétone, acides) nécessitent d'apporter un soin particulier concernant le choix du matériau de fabrication de la cellule.

Dans ce paragraphe, nous présentons quelques configurations qui permettent des fonctionnements en milieu liquide.

#### *I.1.3.a Dispositifs à ondes de volumes*

En milieu liquide, les dispositifs à ondes de volume sont les plus utilisés. Deux types de cellules sont très répandus, cf. Figure I-8 a) et b). Celles-ci nécessitent d'amener l'échantillon (en statique avec une pipette, ou en continu par une pompe) sur la surface sensible du capteur, qui peut être orientée vers le haut, ou vers le bas. Dans cette dernière configuration, un système de pompe indispensable permet d'amener l'échantillon liquide, il permet en outre d'effectuer des procédures automatisées.



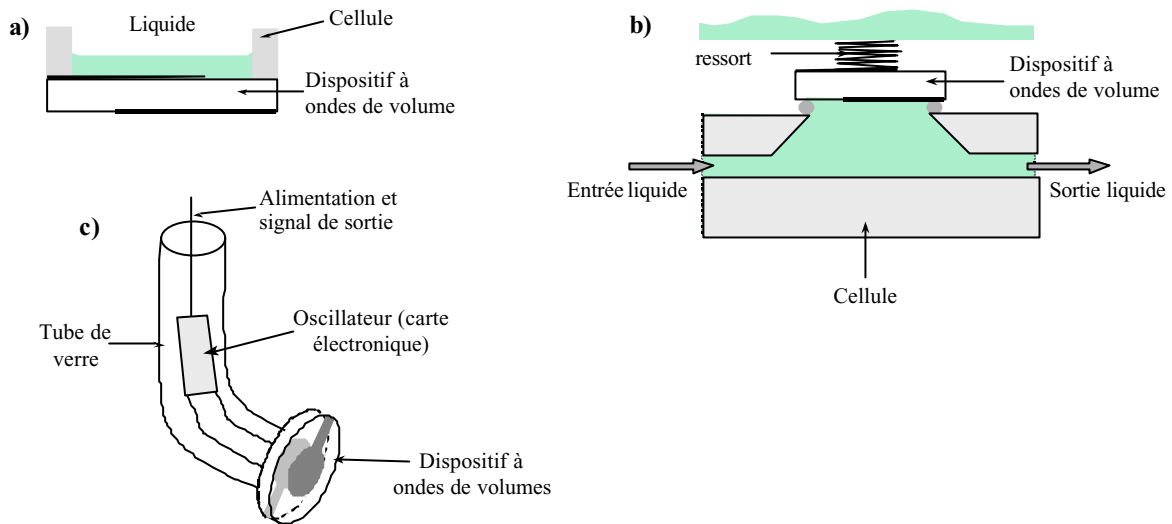


Figure I-8 : Cellules en milieu liquide pour les dispositifs à ondes de volume.

Un troisième type de cellule proposé par Schumacher *et al.* [I-17] permet un fonctionnement par immersion du capteur dans le liquide (Figure I-8 c).

### I.1.3.b Dispositifs à modes de plaques

Concernant les dispositifs à modes de plaques, comme pour les dispositifs à ondes de volume, les déplacements acoustiques s'effectuent dans tout le volume du matériau. Ainsi, les électrodes interdigitées et le milieu de test seront placés respectivement sur chaque face du dispositif pour faciliter leur isolement (cf. Figure I-9).

Avec ce type de dispositif, l'échantillon peut être introduit par une micropipette [I-18], ou également avec un système de pompe [I-19].

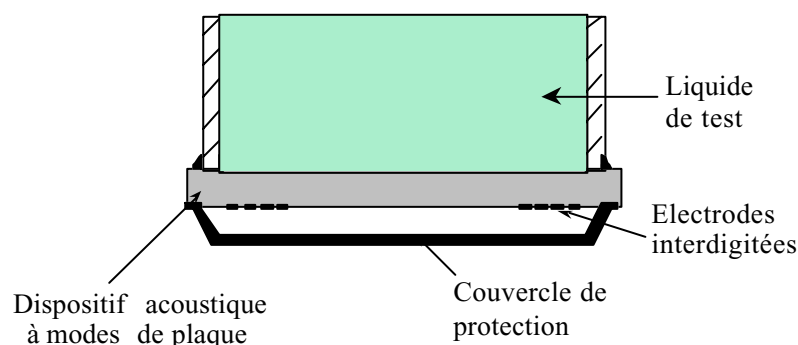


Figure I-9 : Cellule en milieu liquide pour les dispositifs à ondes de plaque.

## I.1.3.c Dispositifs planaires (ondes de surface, ondes de Love)

Dans ces configurations, l'onde est localisée du même côté que les électrodes interdigitées. La cellule doit donc permettre de placer le liquide de test sur le chemin acoustique tout en protégeant les connexions électriques. La cellule peut être positionnée de deux manières différentes :

- soit en confinant le liquide de façon à ce que ce dernier ne soit pas superposé aux IDT (Figure I-10 a). Cette configuration est indispensable pour les ondes de surfaces, elle est également utilisée par certains auteurs dans le cas des ondes de Love [I-20].
- soit en permettant au volume du liquide d'être superposé aux IDT (Figure I-10 b). Cette configuration est possible avec les ondes de Love, car la couche guidante empêche le contact entre le liquide et les IDT.

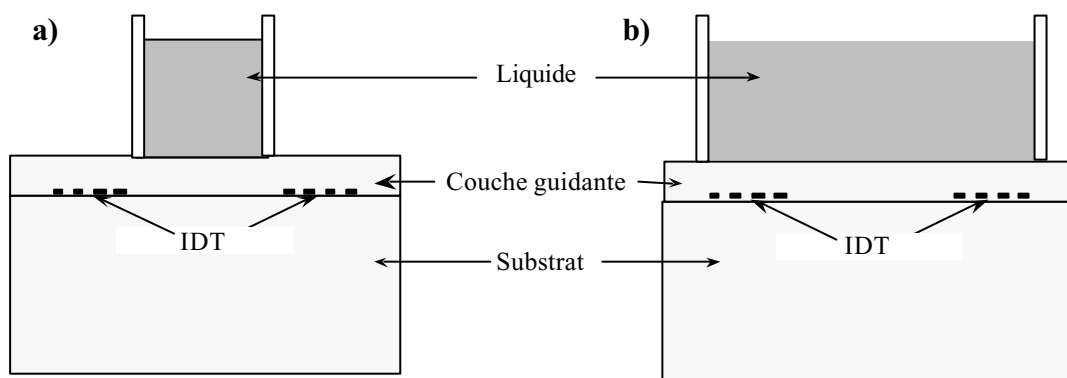


Figure I-10 : Cellule en milieu liquide pour les dispositifs planaires.

La configuration de la Figure I-10 a) présente l'avantage de limiter les couplages électriques entre les électrodes et le milieu liquide. En revanche, un soin particulier doit être apporté au choix du joint d'étanchéité pour effectuer le contact entre la cellule et le dispositif, le joint doit non seulement résister aux solutions de tests, mais ne doit pas être trop absorbant vis-à-vis des ondes acoustiques. Une solution peut consister à mettre en œuvre pour la réalisation de la cellule des technologies pointues telles que le micro usinage par exemple [I-20].

La configuration de la Figure I-10 b) permet de fabriquer une cellule avec des techniques plus accessibles, et présente moins de limitations pour le choix du joint d'étanchéité. Cette configuration a notamment été utilisée pour des détections en milieu liquide par Du *et al.* [I-21].

En fonction des applications étudiées, et des propriétés mécaniques, différents matériaux tels que le plexiglas, le silicone, le verre sont utilisés. Cependant pour des applications en mode capteur, la matière la plus utilisée est le téflon qui présente une excellente inertie chimique.

### *1.2 Dispositifs à ondes de Love en milieu liquide*

Nous présentons dans ce paragraphe les principaux travaux publiés concernant les réalisations technologiques des dispositifs à ondes de Love, ainsi que les applications à la caractérisation physique de milieux liquides, et à la détection.

#### *1.2.1 Les différents types de dispositifs réalisés*

##### *1.2.1.a Choix du substrat, nature des électrodes interdigitées*

Les lignes à retard à ondes de Love se composent principalement de deux matériaux : le substrat piézoélectrique, et la couche guidante supposée isotrope.

Pour les applications à la détection ou à la caractérisation de milieux liquides, le substrat le plus couramment utilisé est le quartz.

Cependant Fabien Josse pour des applications de type immunocapteur utilise le tantalate de lithium ( $\text{LiTaO}_3$ ) [I-22].

La principale différence entre ces deux matériaux est le coefficient de couplage électromécanique effectif  $K^2$  (cf. chapitre II). Ce dernier représente le couplage entre les paramètres électriques et mécaniques du système. Falk Hermann montre que  $K_{\text{LiTaO}_3/\text{SiO}_2}^2 \approx 5\%$  tandis que  $K_{\text{Quartz}/\text{SiO}_2}^2 \approx 0,15\%$  [I-23].

Il montre également que la sensibilité des dispositifs Quartz/ $\text{SiO}_2$  est supérieure à celle des dispositifs  $\text{LiTaO}_3/\text{SiO}_2$  pour des rapports  $\frac{\text{épaisseur SiO}_2}{\text{longueur d'onde}} \leq 0,3$  [I-23].

De plus, l'un des avantages du quartz est de pouvoir négliger en première approximation les effets de la piézoélectricité. Cela permet de mettre en œuvre des modèles théoriques purement mécaniques [I-11], [I-16], [I-21], [I-24], facilitant une étude analytique.

Les substrats piézoélectriques étant anisotropes, différentes coupes cristallographiques peuvent être utilisées. Le choix de ce paramètre est particulièrement important. En effet, dans le cas d'une structure quartz /  $\text{SiO}_2$ , il n'y a génération d'ondes de Love que pour certaines orientations cristallographiques [I-11]. De plus, la coupe du substrat a une influence sur la

sensibilité du dispositif aux paramètres extérieurs (température notamment) à minimiser, et à l'effet de masse à privilégier [I-2], [I-11], I-23].

Les électrodes interdigitées sont gravées à la surface du substrat. Deux matériaux sont principalement utilisés :

- L'or, qui est déposé sur le substrat par l'intermédiaire d'une couche d'accrochage de chrome. L'or présente une forte densité, mais il a une très bonne conductivité électrique ; ainsi des épaisseurs fines (typiquement plusieurs dizaines de nanomètres [I-22]) sont utilisées afin de minimiser la rupture d'impédance acoustique.
- L'aluminium, qui est un métal peu dense mais moins conducteur est déposé directement sur le substrat de  $\text{LiTaO}_3$  ou de quartz avec des épaisseurs typiques de l'ordre de 300 nm. La technologie à mettre en œuvre est donc moins complexe, des réflexions dues à la rupture d'impédance peuvent se produire.
- Du *et al.* utilisent des électrodes interdigitées en Chrome qui déposées sur un substrat de quartz.

### I.2.1.b Choix de la couche guidante

Une condition nécessaire pour qu'il y ait couplage de l'onde de Love dans la couche guidante est que la vitesse de l'onde de volume transverse dans le matériau de la couche guidante soit inférieure à la vitesse de l'onde de volume transverse dans le substrat [I-11].

De plus afin d'assurer le fonctionnement et la stabilité de la ligne à retard, il doit y avoir une bonne continuité affinité mécanique entre la couche guidante et le substrat. Ainsi les principaux matériaux utilisés sont le  $\text{SiO}_2$ , et le PMMA (polyméthylmethacrylate).

Pour certaines applications, le choix du PMMA est motivé par la facilité de dépôt et par le fait que ce dernier peut éventuellement servir de couche sensible [I-25]. Le choix du  $\text{SiO}_2$  permet d'étudier une structure générique assurant les meilleures conditions de propagation de l'onde élastique et qui servira de base pour tout type de couche sensible en fonction de l'application visée.

Un récapitulatif de différents dispositifs étudiés dans la littérature est présenté dans le Tableau I-2.

Substrat	LiTaO <sub>3</sub> (coupe) 36° Y-X			Quartz (coupe)		
				ST / AT		ST
IDT $\lambda$ ( $\mu\text{m}$ )	Aluminium 16 → 60	Chrome / Or 40		Aluminium Hermann : 16 → 60 Vellekoop : 40, 52	Chrome 40	Chrome / Or 45
Couche guidante technique de dépôt	SiO <sub>2</sub> PECVD	PMMA tournette	<sup>(1)</sup> CEC tournette	SiO <sub>2</sub> PECVD	SiO <sub>2</sub>	<sup>(2)</sup> Novolac tournette
Sensibilité ( $\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$ )	<sup>(3)</sup> 8	13,8		<sup>(3)</sup> 18.5	<sup>(3)</sup> 30	
Equipe, références	Hermann <i>et al.</i> [I-23]	Josse <i>et al.</i> [I-22]		Jakoby <i>et al.</i> , Hermann <i>et al.</i> [I-16], [I-23]	Harding <i>et al.</i> [I-21]	Gizeli [I-27]

<sup>(1)</sup> CEC : cyanoethylcellulose.

<sup>(2)</sup> Novolac : polymère fabriqué par « Plessey GEC Marconi »

<sup>(3)</sup> Ces sensibilités ont été déterminées en milieu gazeux (air ambiant).

Tableau I-2 : Principaux dispositifs à ondes de Love réalisés, sensibilité à l'effet de masse.

Eventuellement, une fine couche ( $\approx 600$  nm) d'aluminium [I-26] ou ( $\approx 60$  nm + 60 nm) de chrome / or [I-16] recouvrant la surface de la couche guidante de la ligne à retard peut être ajoutée. Cette couche métallique, connectée à la masse du signal RF, permet d'annuler les perturbations électriques (conductivité et permittivité) apportées par le milieu liquide [I-26] sur les caractéristiques de propagation de l'onde.

### I.2.1.c Choix de la couche sensible

Dans le cas d'une application capteur, une couche sensible et sélective à l'espèce que l'on souhaite détecter est déposée sur la surface de la ligne à retard.

Son choix est essentiellement motivé par les affinités physico-chimiques entre la couche sensible et l'espèce à détecter.

La plupart des capteurs réalisés sont en fait des immunodétecteurs. Ce type de dispositif consiste à détecter un antigène présent en solution, la couche sensible étant l'anticorps

spécifique associé qui est greffé sur la couche guidante. Nous présentons certains de ces travaux dans le paragraphe I.2.3.

### *I.2.2 Caractérisation de milieux liquides*

L'étude des dispositifs à ondes de Love et de leurs applications à la détection (bio)chimique nécessite la connaissance préalable de leur comportement en fonction des caractéristiques physiques du milieu de test. Cette sensibilité peut aussi être éventuellement utilisée, et dans ce cas privilégiée, pour mesurer et/ou suivre l'évolution en temps réel des propriétés mécaniques et/ou électriques d'un liquide. Dans ce cas les dispositifs à ondes de Love peuvent être utilisés dans leur configuration de base : substrat / couche guidante.

#### I.2.2.a Modélisation d'un milieu liquide

A ce jour, seules les études des caractéristiques mécaniques des liquides sont présentées dans la littérature.

Le liquide est représenté comme une couche isotrope semi-infinie caractérisée par les paramètres mécaniques suivants : son module de rigidité transverse  $\mu_L$  en  $N.m^{-2}$ , sa viscosité  $\eta$  en  $Pa.s^{-1}$  qui est l'unité S.I (une unité très souvent utilisée dans le cas des liquides de faibles viscosités est le centipoise,  $1 \text{ cP} = 10^{-3} \text{ Pa.s}^{-1}$ ), et enfin sa masse volumique  $\rho_L$  en  $kg.m^{-3}$ .

On définit  $\tau$ , le temps de relaxation transverse qui est associé à la transition d'un comportement visqueux du liquide à un comportement rigide.  $\tau$  est relié à la viscosité transverse  $\eta$ , et au coefficient de rigidité transverse  $\mu$  par la relation suivante :

$$\tau = \frac{\eta}{\mu_L} \quad (I-3)$$

Dans le cas général, le liquide a un comportement visco-élastique (ou " maxwellien "). Ce modèle [I-16] peut être simplifié pour deux domaines extrêmes :

- En basse fréquence et/ou à faible viscosité ( $\omega.\tau \ll 1$ ), le liquide a un comportement purement visqueux (ou " newtonien ").
- En haute fréquence et/ou à viscosité élevée ( $\omega.\tau \gg 1$ ), le liquide a un comportement rigide (solide amorphe).

I.2.2.b Ondes transverses horizontales en milieu liquide. Couplage acoustique à l'interface solide/liquide

L'une des conditions de continuité mécanique consiste à avoir égalité des déplacements acoustiques à l'interface solide/liquide. Cette condition implique qu'il n'y ait pas de glissement de la couche de liquide sur la surface du capteur. Ainsi, alors que l'onde de Love reste confinée dans la couche guidante en milieu gazeux, en présence d'un liquide, une partie de l'onde est rayonnée dans le milieu adjacent. La profondeur de pénétration de l'onde dans le liquide est donnée par la relation suivante [I-16], [I-19], I-24] :

$$\delta = \sqrt{\frac{2\eta}{\rho_L \omega}} \quad (I-4)$$

Dans le cas de l'eau ( $\eta \approx 1\text{cP}$ ,  $\rho_L \approx 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ ), avec une fréquence de fonctionnement de l'ordre de 100 MHz, la profondeur de pénétration de l'onde est de l'ordre de 50 nm.

Cette relation fait apparaître un paramètre mécanique important des liquides qui est la viscosité, elle représente les forces de frictions internes du liquide en mouvement.

Dans le cas des ondes SH-APM, Martin *et al.* ont tracé les profils des vitesses à l'interface solide/liquide, nous pouvons voir ainsi, sur la Figure I-11, l'entraînement du liquide sur une faible épaisseur par un mode de plaque T.H..

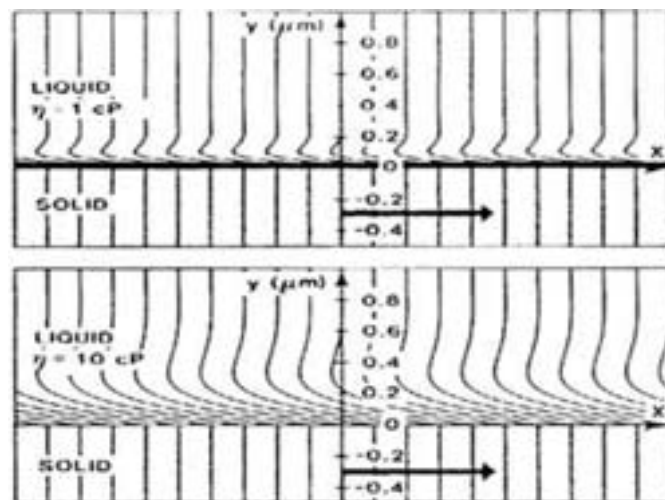


Figure I-11 : Profils calculés de la vitesse à l'interface solide/liquide pour une onde SH-APM.

D'après [I-19].

### I.2.2.c Modélisation de la propagation des ondes de Love en milieu liquide

Un large éventail de méthodes de calcul est proposé afin de déterminer les caractéristiques de propagation des ondes de Love. Les paramètres calculés sont la vitesse de propagation de l'onde, et/ou sa fréquence propre [I-19], la constante de propagation [I-16], et les pertes acoustiques [I-16].

La résolution des modèles peut s'effectuer en utilisant des méthodes numériques [I-24], [I-28], ou alors analytiquement. La grande majorité des chercheurs utilise la théorie des perturbations définie par Auld [I-13]. Cette méthode n'est valable que si l'épaisseur de la couche guidante est très petite devant la longueur d'onde.

La modélisation la plus simple est présentée par les équipes de recherche de M. J. Vellekoop [I-16] et de Hermann [I-32]. En se basant sur les travaux de S. J. Martin et A. J. Ricco pour les dispositifs SH-APM [I-19], ils peuvent déterminer la variation de la constante de propagation de l'onde de Love, ainsi que les pertes acoustiques.

La constante de propagation  $\gamma$  est définie par le terme complexe suivant :

$$\gamma = \alpha + jk \quad (I-5)$$

$\alpha$  : pertes acoustiques

$k$  : vecteur d'onde.

Ainsi sous l'effet de la charge d'un liquide visqueux **Newtonien**, la variation de la constante de propagation de l'onde s'écrit :

$$\frac{\Delta\alpha}{k} + j\frac{\Delta k}{k} = S_k (j\rho_L \omega\eta)^{1/2} \quad S_k > 0 \quad (I-6)$$

$$\Rightarrow \frac{\Delta\alpha}{k} = \frac{\Delta k}{k} = S_k \sqrt{\frac{\rho_L \omega\eta}{2}} \quad (I-7)$$

Dans le cas d'un régime **Maxwellien**, on obtient :

$$\frac{\Delta\alpha}{k} + j\frac{\Delta k}{k} = S_k \left( \rho_L \frac{j\omega\eta}{1 + j\omega\eta/\mu} \right)^{1/2}$$



La quantité  $S_k$  représente la sensibilité du dispositif à la charge mécanique apportée par le liquide, par rapport à la variation relative du vecteur d'onde. Elle peut être calculée [I-30], [I-32]. Cependant M. J. Vellekoop *et al.*, la mesurent avec un effet de masse en utilisant une couche fine de polymère [I-33]. Ils utilisent alors les relations liant les variations relatives de constante de propagation, de fréquence et de vitesse relative, ces dernières étant reliées par la relation suivante [I-30], [I-31] :

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{V_g}{V_p} \frac{\Delta V_p}{V_p} = - \frac{V_g}{V_p} \frac{\Delta k}{k} \quad (I-8)$$

$V_g$  : vitesse de groupe de l'onde.

Dans l'équipe de Hermann, c'est la variation de fréquence relative qui est directement modélisée [I-32], ainsi ils obtiennent la relation suivante :

$$\frac{\Delta f}{f} = S_f \sqrt{\frac{\rho_L \omega \eta}{2}} \quad \text{avec } S_f < 0 \text{ sensibilité du dispositif au liquide en fréquence.}$$

On pourrait de même définir une sensibilité du dispositif au liquide en vitesse relative, qui s'exprimerait dans le cas d'un liquide Newtonien par  $S_v$  tel que :

$$\frac{\Delta V_p}{V_p} = S_v \sqrt{\frac{\rho_L \omega \eta}{2}} \quad \text{avec } S_v < 0 \text{ sensibilité du dispositif au liquide en vitesse.}$$

Ces trois sensibilités du dispositif à la charge mécanique apportée par le liquide sont alors liées par la relation :

$$S_f = - \frac{V_g}{V_p} S_k = \frac{V_g}{V_p} S_v \quad \text{Leur unité est le } m^2.s.kg^{-1}.$$

#### I.2.2.d Application à la caractérisation de milieux liquides

Les modèles établis et les résultats théoriques ainsi obtenus peuvent être validés en les confrontant avec des caractérisations expérimentales en présence de différents liquides de test. La relation (I-8) permet de relier les influences des paramètres mécaniques du liquide sur le vecteur d'onde, la vitesse de phase, ou la fréquence. Cette relation permettra notamment de

comparer les résultats théoriques (calcul de la vitesse de phase ou du vecteur d'onde) et expérimentaux (mesure de fréquence).

En utilisant des solutions aqueuses de glycérol de viscosités différentes, Jakoby mesure les pertes visqueuses [I-16]. La ligne à retard utilisée est métallisée afin de négliger l'influence des paramètres électriques du liquide.

L'équipe de Hermann, en utilisant des dispositifs avec des sillons gravés en surface (cf. Figure I-12), est capable de déterminer séparément la viscosité et la masse volumique d'échantillons liquides [I-32].

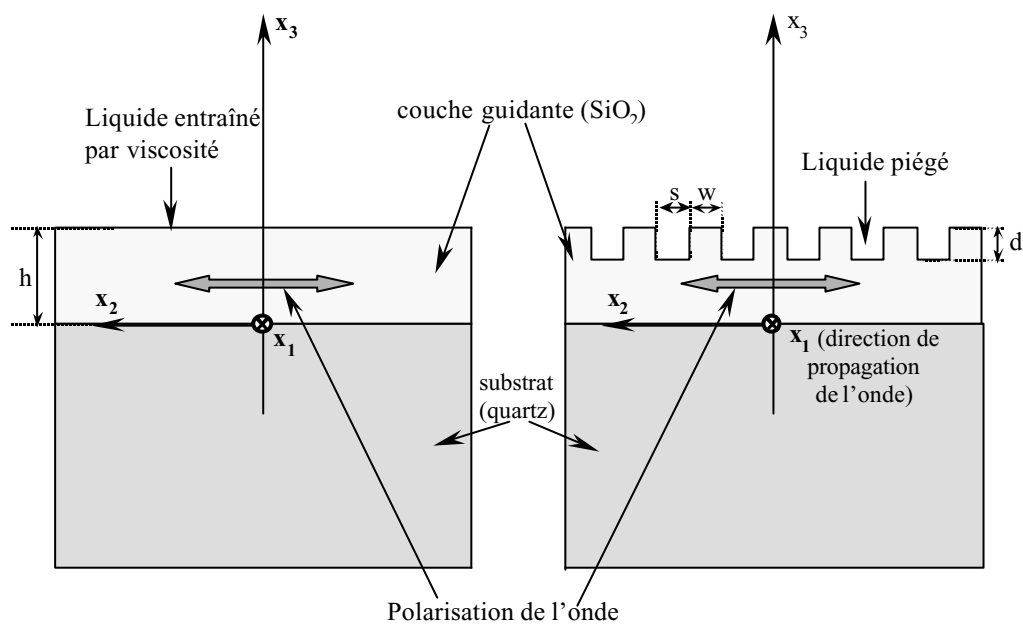


Figure I-12 : Ligne à retard à ondes de Love, dispositif lisse, et sillonné.

( $h = 2,4 \mu\text{m}$ ,  $s = 2,3 \mu\text{m}$ ,  $w = 2,7 \mu\text{m}$ ,  $d = 0,4 \mu\text{m}$ ). D'après [I-32].

Comme le montre la Figure I-12, la densité et la viscosité du liquide présent sur la partie lisse de la couche guidante perturbent les paramètres de propagation de l'onde de Love. En revanche les sillons gravés perpendiculairement à la direction de déplacement, permettent de piéger le liquide. Ainsi, seule la masse volumique de l'échantillon perturbe l'onde de Love.

A ce jour, peu de chercheurs ont travaillé sur des applications à la caractérisation physique de milieux liquides avec des ondes de Love. En revanche plusieurs équipes ont utilisé ces dispositifs afin d'effectuer de la détection biochimique en milieu liquide. Nous présentons les principaux exemples d'applications dans le paragraphe suivant.

### I.2.3 Biocapteurs à ondes de Love

Dans la continuité des travaux réalisés avec les dispositifs à ondes de volumes [I-5], [I-8], et les dispositifs SH-APM [I-6], [I-19], l'utilisation des dispositifs à ondes de Love pour des applications de détection en milieu biologique s'est développée à partir des années 1990. L'intérêt des ondes de Love s'est imposé à partir du moment où leur meilleure sensibilité fut démontrée [I-11].

#### I.2.3.a Modélisation de l'effet de masse en milieu liquide

L'effet de masse est aussi modélisé en utilisant la théorie des perturbations. Cette dernière considère un dispositif à onde de Love en milieu gazeux, et une couche mince (épaisseur  $\ll$  longueur d'onde) est déposée à la surface de la ligne à retard. La perturbation de l'onde induite par la variation de masse est exprimée avec la relation suivante [I-13] :

$$\frac{\Delta k}{k} = -\frac{\Delta V_p}{V_p} = \frac{V_p b \rho_b}{4P} \left( 1 - \left( \frac{V_b}{V_p} \right)^2 \right) |u_{x2}| \quad (I-9)$$

Avec :

$V_p$  : vitesse de phase de l'onde

$b$  : épaisseur du film

$\rho_b$  : masse volumique du film

$\mu_b$  : module élastique transverse du film

$V_b$  : vitesse de l'onde transverse dans le film,  $V_b = (\mu_b/\rho_b)^{1/2}$

$k$  : constante de propagation ou vecteur d'onde ( $k = \omega/V_p$ ,  $\omega$  : pulsation)

$u_{x2}$  : amplitude du déplacement mécanique dans la direction  $x_2$ , (direction transverse horizontale)

$P$  : flux de puissance moyen par unité de largeur le long de la direction de propagation

Puis la sensibilité du capteur à l'effet de masse est calculée avec la relation suivante :

$$S_{mk} = \lim_{b \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta(\rho_b b)} \left( \frac{\Delta k}{k} \right)$$

L'unité de la sensibilité à l'effet de masse est le  $m^2.kg^{-1}$ .

De manière analogue au § I.2.2.d, il est possible d'exprimer la sensibilité à l'effet de masse en fonction de la variation de longueur d'onde relative ( $S_{m\beta}$ ), de la variation de fréquence relative ( $S_{mf}$ ), ou de la variation de vitesse relative ( $S_{mv}$ ), en utilisant les relations (I-8).

Ainsi toutes les optimisations proposées afin d'améliorer la sensibilité du capteur sont déterminées en milieu gazeux. Le paramètre important de la ligne à retard qui influence la sensibilité à l'effet de masse est le rapport  $h/\lambda$  [I-24], [I-33] ( $h$  : épaisseur de la couche guidante,  $\lambda$  : longueur d'onde).

Mc Mullan *et al.* proposent également une résolution numérique basée sur la théorie des perturbations afin de déterminer la sensibilité à l'effet de masse du capteur en fonction de la variation de fréquence relative. Cependant, ces derniers prennent en compte les paramètres mécaniques du liquide, sans considérer les pertes visqueuses en transmission (c'est-à-dire  $\alpha_1 = 0$  dans l'équation 1-2) [I-24]. Ainsi un réseau de trois courbes représentant la sensibilité à l'effet de masse en fonction de l'épaisseur de la couche guidante et de la viscosité du liquide a été tracé sur la Figure I-13.

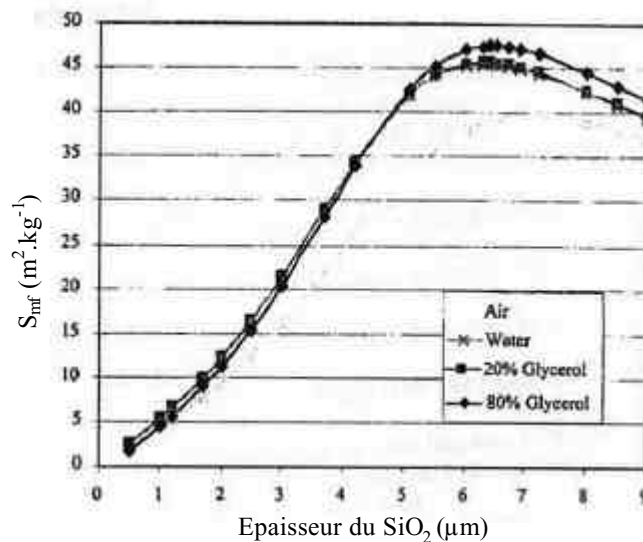


Figure I-13 : Influence de la viscosité du liquide et de l'épaisseur du  $SiO_2$  sur la sensibilité à l'effet de masse (substrat de quartz, couche guidante de  $SiO_2$ ,  $f_0 = 124$  MHz) [I-24].

On reconnaît sur cette courbe une évolution similaire à celles obtenues par les autres auteurs pour la sensibilité en fonction de l'épaisseur de  $SiO_2$  avec en particulier la mise en évidence d'une épaisseur optimale (de l'ordre de 6  $\mu m$  ici). Nous pouvons également remarquer que la sensibilité à l'effet de masse du capteur augmente légèrement avec la viscosité de la solution.

I.2.3.b Détection (bio)chimique

Le terme « bio » que l'on retrouve dans les dénominations biocapteur, et biochimique, signifie que les molécules que l'on souhaite détecter appartiennent au milieu biologique. La plupart des détections en milieu liquide présentées dans la littérature appartiennent au domaine biologique. La raison de ce grand intérêt est le champ d'application très vaste : milieu médical, agroalimentaire, environnement écologique, etc...

Trois principales équipes étudient la détection d'espèces biologiques en milieu liquide avec des dispositifs à ondes de Love : Gizeli *et al.* (Angleterre), Du *et al.* (Australie), Josse *et al.* (Etats-Unis).

Les deux dernières utilisent une configuration différentielle pour leur capteur. La couche sensible d'anticorps est greffée sur une ligne à retard (la ligne sensible). Sur la deuxième ligne (la ligne de référence), une couche d'anticorps non spécifiques est déposée cf. Figure I-14.

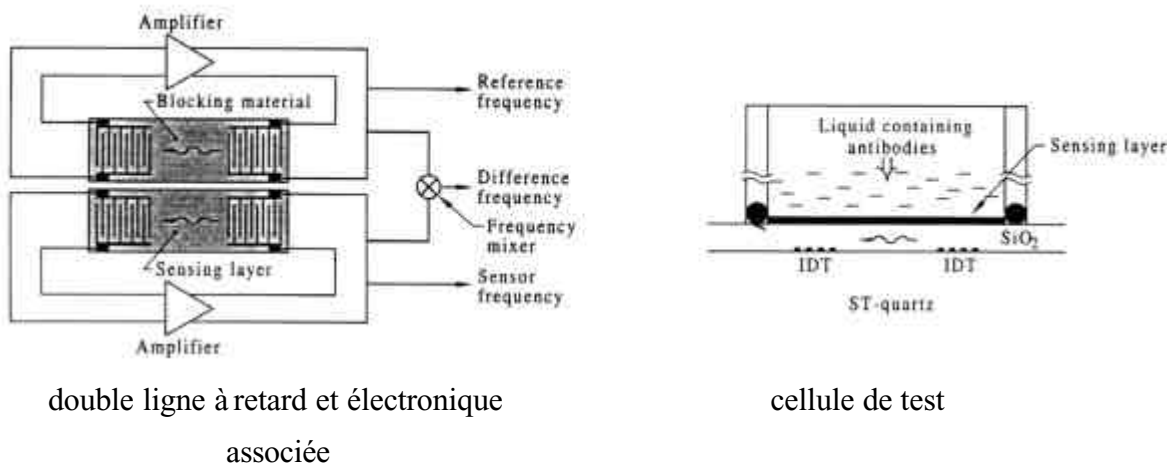
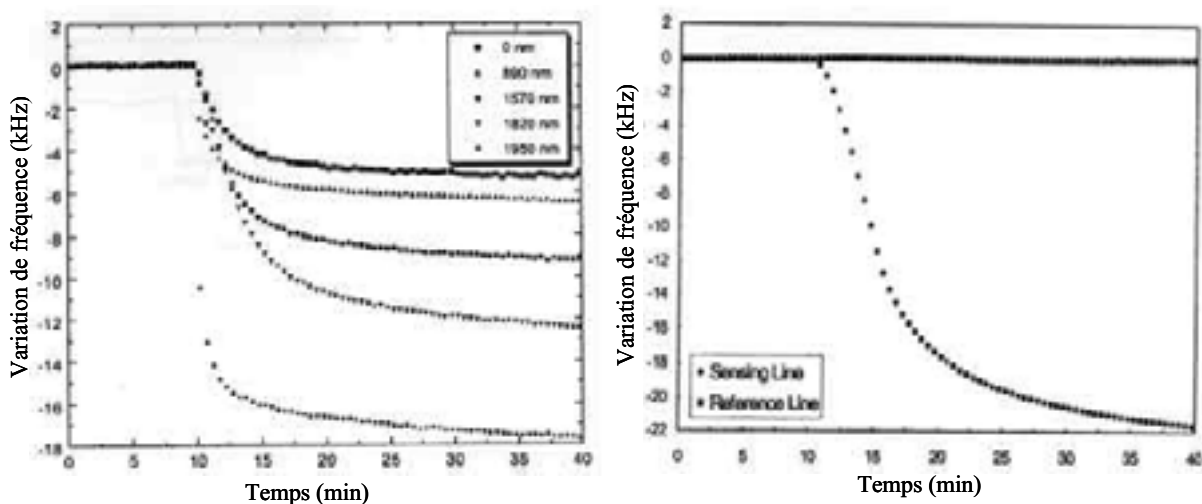


Figure I-14 : Dispositif utilisé par Du *et al.* pour la détection d'anticorps [I-21].

La ligne sensible réagit à l'accumulation de masse à la surface du capteur durant la détection, mais aussi aux variations des paramètres physiques du liquide (viscosité, densité, température). En revanche la ligne de référence ne réagit qu'aux variations des paramètres physiques du liquide. Cette ligne de référence permettra de suivre et ainsi de compenser des variations de paramètres autres que la fixation de l'antigène cible (température, viscosité, réaction non spécifique).

La Figure I-15 montre les principaux résultats présentés par Josse *et al.* dans le domaine immunologique. Le dispositif utilisé est constitué d'un substrat de tantalate de lithium et

d'une couche guidante de PMMA (cf. Tableau I-2). Des anticorps de chèvre sont déposés sur la ligne sensible, et la ligne de référence ainsi que tous les sites non spécifiques de la ligne sensible sont saturés avec de la BSA (bovine serum albumin). L'antigène de chèvre est la biomolécule à détecter. Celle-ci est injectée dans une solution solvant contenant des antigènes de lapin.



a) Réponse pour différentes épaisseurs de couche guidante de PMMA  
24 µg.mL<sup>-1</sup> de solution.

b) Réponse de la ligne sensible, et de la ligne de référence. Epaisseur de PMMA : 2,2 µm.  
3 µg.mL<sup>-1</sup> de solution.

Figure I-15 : Réponse en fréquence des dispositifs à ondes de Love après l'injection d'une solution d'antigènes de chèvre (dispositif : LiTaO<sub>3</sub> / PMMA). D'après [I-22].

L'auteur montre expérimentalement sur la courbe a) de la Figure I-15, l'influence de l'épaisseur de la couche guidante de PMMA sur la sensibilité du capteur. Pour des épaisseurs comprises entre 0 et 2 µm environ, la chute de fréquence augmente avec l'épaisseur de PMMA pour un même échantillon.

Sur la courbe b) de la Figure I-15, l'auteur montre les signaux superposés de la ligne de référence (référence line), et de la ligne sensible (sensing line). Nous pouvons voir que l'influence de la variation des paramètres physiques du liquide sur la fréquence du système lors de la détection reste très faible en comparaison à l'accumulation de masse.

Il serait donc possible en première approximation d'effectuer des expériences de détection en n'utilisant qu'une ligne, la ligne sensible.

Harding *et al.* réalisent le même type de détection que Josse *et al.*. Leur couche sensible est constituée d'anticorps de moutons, afin de détecter leurs antigènes associés (cf. Figure I-16).

Des anticorps de lapin sont greffés sur la ligne de référence. Dans leur configuration de ligne à retard différentielle, ils mettent également en évidence lors de leurs expériences une forte sensibilité de leur capteur à l'accumulation de masse (sensing channel), et une faible sensibilité aux variations de paramètres physiques du liquide (reference channel).

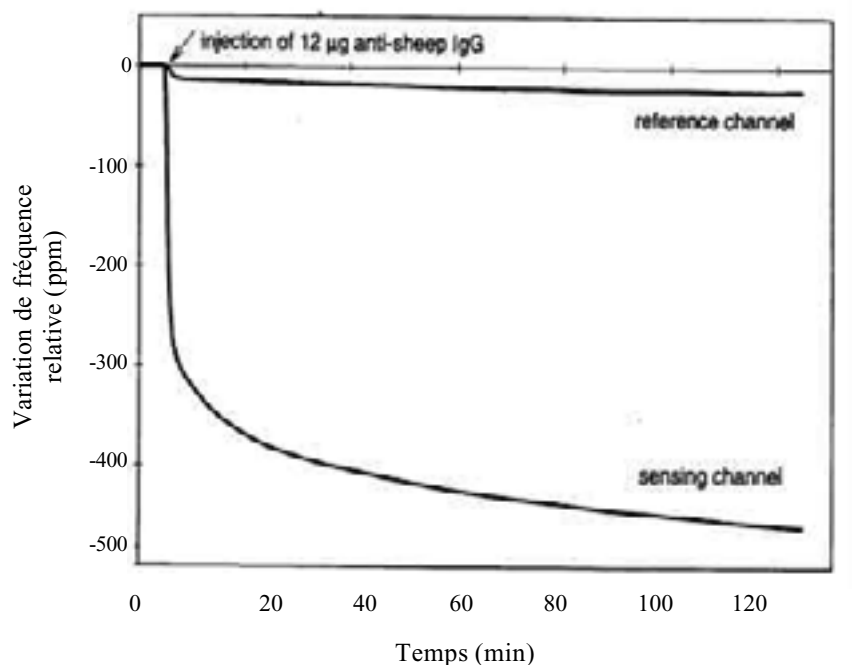


Figure I-16 : Réponse en fréquence des dispositifs à ondes de Love après l'injection d'une solution d'antigènes de mouton dispositif : Quartz / SiO<sub>2</sub> D'après [I-21].

Gizeli *et al.* montrent une application où ils détectent la présence de couches de lipides. Le dispositif est constitué d'un substrat de quartz, avec un polymère de 1 µm d'épaisseur comme couche guidante. Un film d'or de 5 nm d'épaisseur déposé sur le polymère permet de fixer une couche sensible d'anticorps. Ainsi, des résultats présentant l'accrochage d'une monocouche puis d'une bicouche de lipides sont présentés [I-16].

#### *1.2.4 Synthèse : les dispositifs à ondes de Love dans le monde*

Avant de conclure sur ce chapitre, nous récapitulons dans le Tableau I-3 les travaux des principales équipes de recherches ayant utilisé des dispositifs à ondes de Love pour des applications à la caractérisation ou à la détection en milieu liquide.

Equipes de recherche	Dispositifs utilisés			Caractérisation de milieux liquides		Détection en milieu liquide	
	Substrat	IDT	Couche guidante	variables	échantillons	couche sensible	polluant
<b>Hermann <i>et al.</i></b> (Laboratoire R. Bosch, Allemagne) [I-32]	Quartz : coupe ST	Aluminium ( $\lambda = 40 \mu\text{m}$ )	SiO <sub>2</sub> , « lisse et sillonné » h = 2,4 $\mu\text{m}$	$\eta$ et $\rho_L$ séparément	hydrocarbures		
<b>Jakoby <i>et al.</i></b> (Université de Delft, Hollande) [I-16]	Quartz : coupe ST	Aluminium ( $\lambda = 40 \mu\text{m}$ )  $\lambda = 52 \mu\text{m}$ )	SiO <sub>2</sub> , h = 5,7 $\mu\text{m}$ + métallisation aluminium  ou chrome / or	$\sqrt{\omega\rho_L\eta}$	mélanges eau / glycérol		
<b>Josse <i>et al.</i></b> (Université de Marquette, Wisconsin, USA) [I-22]	LiTaO <sub>3</sub> : coupe 36°  Y-X	Chrome / Or ( $\lambda = 40 \mu\text{m}$ )	( <sup>1</sup> ) PMMA  ( <sup>2</sup> ) CEC			anticorps de chèvre	antigènes de chèvre
<b>Harding <i>et al.</i></b> (CSIRO Division of Applied Physics, Australie) [I-21]	Quartz : coupe ST	Chrome ( $\lambda = 40 \mu\text{m}$ )	SiO <sub>2</sub> , h = 5,6 $\mu\text{m}$			anticorps de mouton	antigènes de mouton
<b>Gizeli <i>et al.</i></b> (Université de Cambridge, Angleterre) [I-24], [I-27]	Quartz : coupe ST	Chrome / Or ( $\lambda = 45 \mu\text{m}$ )	( <sup>3</sup> ) Novolac, h = 1 $\mu\text{m}$ + couche d'or  ( <sup>4</sup> ) SiO <sub>2</sub> , h = 6,4 $\mu\text{m}$	% de glycérol dans eau	mélanges eau / glycérol	anticorps	lipides

(<sup>1</sup>) PMMA : polyméthylméthacrylate (<sup>2</sup>) CEC : cyanoéthylcellulose (<sup>3</sup>) Novolac : polymère fabriqué par « Plessey GEC Marconi » (<sup>4</sup>) Etude théorique uniquement

Tableau I-3 : Principales équipes de recherche utilisant des lignes à retard à ondes de Love et applications étudiées.



### *1.3 Conclusion*

Dans le large éventail des ondes T.H. (balance à quartz, ondes SH-APM, etc...), les dispositifs à ondes de Love sont les plus prometteurs en terme de sensibilité à l'effet de masse, afin d'effectuer des applications à la détection notamment en milieu liquide [I-21], [I-22], [I-27]. Certains chercheurs s'y intéressent également pour réaliser de la caractérisation physique de milieux liquides [I-32].

Les études réalisées au laboratoire IXL sur les dispositifs à ondes de Love et leurs applications à la détection en milieu gazeux, avaient mis en évidence des résultats particulièrement intéressants. Il était alors apparu nécessaire, pour étudier l'application de ces dispositifs à la détection en milieu liquide, d'effectuer un travail complémentaire de modélisation et de simulation. Ces éléments théoriques font l'objet des deux chapitres suivants. Ils sont destinés à concevoir des dispositifs adaptés, limitant ainsi les étapes technologiques de prototypage et de test, lourdes et longues à mettre en œuvre.





**CHAPITRE II**  
**MODELISATION D'UNE STRUCTURE**  
**MULTICOUCHE A ONDES DE LOVE**



### *II.1 Modèle multicouche*

La polarisation des ondes acoustiques effectivement générées par les électrodes interdigitées dépend de l'orientation de ces électrodes par rapport à l'axe cristallographique du substrat.

En ce qui concerne les ondes de Love, la polarisation transverse horizontale pure (qu'il sera possible d'obtenir dans certaines coupes de quartz) nous permet de ne considérer qu'une seule composante vectorielle d'une onde de volume se propageant dans notre système. En revanche, la constitution du dispositif qui nécessite au moins deux couches (le substrat semi-infini, et la couche guidante « mince ») pour une ligne à retard nue implique une propagation dans deux milieux distincts. Dans le cas d'une ligne à retard fonctionnant dans une configuration « capteur chimique » en milieu liquide, nous devons prendre en compte une couche sensible, ainsi que le milieu de test en plus du substrat et de la couche guidante comme le montre la Figure II-1.

Notre étude théorique se déroulera en deux étapes. Dans un premier temps nous exprimerons les équations de propagation électriques et mécaniques dans le volume de chaque matériau constituant notre dispositif. Afin de simplifier la résolution, nous ne considérerons pas les pertes acoustiques en transmission, c'est-à-dire que nous exprimerons le vecteur d'onde réel  $k_1 = \frac{\omega}{V_p}$  dans l'équation (I-1). Pour la suite de ce mémoire, nous poserons  $k_1 = k$ .

Puis nous appliquerons les conditions de continuité aux interfaces, ainsi que les conditions aux limites infinies du système. Nous pourrions ainsi déterminer la vitesse de phase (vitesse de propagation) de l'onde de Love en fonction de toutes les caractéristiques physiques du système.

#### *II.1.1 Choix des matériaux, paramètres physiques*

L'étude théorique de la propagation des ondes de Love, est abordée dans le cadre d'un cas particulier directement inspiré des dispositifs étudiés expérimentalement.

Ce type de dispositif comporte deux couches figées : le substrat de quartz, et la couche guidante de SiO<sub>2</sub>. Puis deux couches que l'on pourra modifier, à savoir la couche sensible, et le liquide.

Afin d'exprimer les différents paramètres physiques de notre système, nous utiliserons en indices : la lettre « s » pour le substrat de quartz, la lettre « h » pour la couche guidante de SiO<sub>2</sub>, la lettre « b » pour la couche sensible, et enfin la lettre « L » pour le liquide.

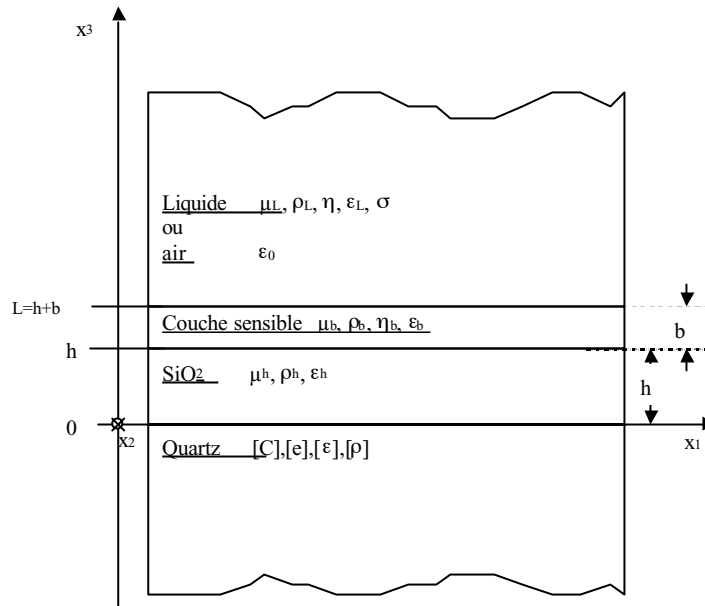


Figure II-1 :Modèle multicouche d'une structure à ondes de Love.

- Substrat semi infini : le quartz.

Celui-ci est un matériau anisotrope piézoélectrique, propriété nécessaire pour générer les ondes acoustiques par des électrodes interdigitées placées en surface dans ce cas.

Il est caractérisé par sa structure cristallographique : trigonal 32, par sa masse volumique :  $\rho_s$ , par ses constantes de rigidité élastique :  $C_{ijkl}$ , par ses constantes diélectriques :  $\epsilon_{jk}$ , et enfin par ses constantes piézoélectriques :  $e_{jkl}$ .

- Couche guidante « mince » : le  $\text{SiO}_2$ .

C'est un matériau isotrope caractérisé par son épaisseur  $h$ , sa masse volumique :  $\rho_h$ , son module de rigidité transverse :  $\mu_h$ , et sa constante diélectrique  $\epsilon_h$ .

- Couche sensible « mince ».

Le matériau constituant la couche sensible est considéré comme isotrope. Il est caractérisé par son épaisseur  $b$ , sa masse volumique  $\rho_b$ , par son module de rigidité transverse  $\mu_b$ , par sa viscosité  $\eta_b$ , et par sa constante diélectrique  $\epsilon_b$ .

- Milieu de test semi infini : le liquide.

Ce milieu est caractérisé par sa masse volumique  $\rho_L$ , par sa viscosité  $\eta$ , éventuellement par son module de rigidité transverse  $\mu_L$ , par sa constante diélectrique  $\epsilon_L$ , et par sa conductivité électrique  $\sigma$ . Comme nous le verrons plus tard, les milieux viscoélastiques sont dits dissipatifs, le comportement rhéologique de ces milieux peut avoir plusieurs effets, ce qui

implique que les paramètres de propagation de l'onde ne seront pas perturbés de la même manière.

- Milieu de test semi-infini : l'air.

Le milieu de l'air est représenté par une viscosité négligeable, ceci implique que nous ne considérerons pas de caractéristiques mécaniques (il n'y a pas de propagation d'ondes acoustiques possible dans ce milieu). En revanche, ce milieu sera représenté par la permittivité électrique du vide  $\epsilon_0$ .

Les différentes valeurs numériques de toutes ces couches sont indiquées en annexe C.

### II.1.2 Equations régissant la propagation des ondes acoustiques

Ces équations lient entre elles des grandeurs purement mécaniques, des grandeurs purement électriques, et également des grandeurs électriques et mécaniques dans le cas de matériaux piézoélectriques.

#### II.1.2.a Matériaux viscoélastiques anisotropes

Dans le cas du quartz, afin de pouvoir étudier ce type de matériau anisotrope et piézoélectrique, une analyse tensorielle est nécessaire. Elle permet d'exprimer les différentes caractéristiques physiques du matériau suivant les trois axes cristallographiques ( $x_1, x_2, x_3$ ).

Le paramètre physique qui lie les composantes mécaniques aux composantes électriques est la piézoélectricité. Le quartz possède cette propriété de se polariser électriquement sous l'action d'une tension mécanique (effet direct) et de se déformer lorsqu'un champ électrique lui est appliqué (effet inverse).

Si un matériau est soumis simultanément à un champ électrique ( $E$ ) et à des déformations ( $S$ ), la contrainte  $T_{ij}$  et l'induction électrique  $D_j$  s'écrivent :

$$T_{ij} = C_{ijkl} S_{kl} + \eta_{ijk} \frac{\partial S_{kl}}{\partial t} - e_{kij} E_k \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (\text{II-1})$$

$$D_j = \epsilon_{jk} E_k + e_{jkl} S_{kl} \quad j, k, l = 1, 2, 3 \quad (\text{II-2})$$

où

[T]	:	tenseur des contraintes (N.m <sup>-2</sup> ).
[C]	:	tenseur des rigidités élastiques (N.m <sup>-2</sup> ).
[S]	:	tenseur des déformations élastiques.
[η]	:	tenseur des viscosités (Pa.s <sup>-1</sup> ).
[e]	:	tenseur de piézo-électricité (N.m <sup>-2</sup> ).
[E]	:	champ électrique (V.m <sup>-1</sup> ).
[D]	:	déplacement électrique (ou induction électrique) (C.m <sup>-2</sup> ).
[ε]	:	tenseur de permittivité diélectrique (F.m <sup>-1</sup> ).

Les composantes du tenseur des déformations [S] s'écrivent :

$$S_{kl} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial U_k}{\partial x_l} + \frac{\partial U_l}{\partial x_k} \right) \quad k, l = 1, 2, 3 \quad (\text{II-3})$$

$U_i$  : déplacement acoustique sur la direction  $x_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ).

Pour une direction de propagation  $x_1$  et dans le repère orthonormé direct ( $x_1, x_2, x_3$ ) :  $U_1$  est le déplacement longitudinal,  $U_2$  est le déplacement transverse horizontal, et  $U_3$  est le déplacement transverse vertical.

Le champ électrique  $E$  dérive d'un potentiel  $\varphi$  :

$$E_k = - \frac{\partial \varphi}{\partial x_k} \quad k = 1, 2, 3 \quad (\text{II-4})$$

$\varphi$  : potentiel électrique (V) Par la suite on posera  $\varphi = U_4$ .

D'après et (II-1), (II-2), (II-3), et (II-4) dans un milieu anisotrope et piézo-électrique, le tenseur des contraintes [T], et le déplacement électrique  $D_j$  sur la direction  $x_j$ , s'écrivent :

$$T_{ij} = C_{ijkl} \frac{\partial U_l}{\partial x_k} + \eta_{ijk} \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\partial U_l}{\partial x_k} \right) + e_{kij} \frac{\partial U_4}{\partial x_k} \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (\text{II-5})$$

$$D_j = e_{jkl} \frac{\partial U_l}{\partial x_k} - \epsilon_{jk} \frac{\partial U_4}{\partial x_k} \quad j, k, l = 1, 2, 3 \quad (\text{II-6})$$

Remarques :

- Du fait de propriétés de symétrie cristalline, le nombre de composantes de ces tenseurs pourra être réduit (cf. annexe B).



- De plus, pour un matériau anisotrope, les éléments des tenseurs dépendent du repère orthonormé choisi. Ils sont donnés dans la littérature, pour de nombreux matériaux, dans un repère orthonormé direct défini par rapport aux axes principaux du cristal. La coupe cristallographique du matériau étant définie par les angles d'Euler ( $\varphi, \theta, \Psi$ ), afin d'obtenir les éléments de ces tenseurs dans ce nouveau repère, on effectue une rotation des tenseurs. Cette rotation est aussi appelée transformation d'Euler (cf. annexe B).

L'équation fondamentale de la dynamique, lorsqu'aucune force extérieure n'est appliquée, s'écrit :

$$\frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} = \rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} \quad i, j = 1, 2, 3 \quad (\text{II-7})$$

où  $\rho$  est la masse volumique ( $\text{kg.m}^{-3}$ ).

De plus l'équation de Poisson s'écrit :

$$\frac{\partial D_j}{\partial x_j} = q_e \quad j = 1, 2, 3 \quad \text{avec } q_e \text{ charge d'espace de notre milieu} \quad (\text{II-8})$$

$$\frac{\partial D_j}{\partial x_j} = 0 \quad j = 1, 2, 3 \quad \text{pour un milieu diélectrique isolant} \quad (\text{II-9})$$

$D_j$  est le déplacement électrique sur la direction  $x_j$ .

En substituant les relations (II-5) et (II-6) dans les équations (II-7) et (II-9) on obtient le système d'équations aux ondes couplées pour un milieu infini non visqueux anisotrope, isolant, et piézo-électrique, comme le quartz :

$$\begin{cases} C_{ijkl} \frac{\partial^2 U_l}{\partial x_j \partial x_k} + e_{kij} \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = \rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} & \text{(a)} \\ e_{jkl} \frac{\partial^2 U_l}{\partial x_j \partial x_k} - \varepsilon_{jk} \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0 & \text{(b)} \end{cases} \quad (\text{II-10})$$

- Coefficient de couplage électroacoustique

Afin de quantifier l'influence de la piézoélectricité du substrat, le coefficient de couplage électroacoustique est défini.

Reprenons le système (II-10) : en exprimant  $U_4$  dans l'équation (II-10b), et en écrivant son expression dans l'équation (II-10a), nous obtenons l'équation suivante pour la relation fondamentale de la dynamique :

$$C_{ijkl} \left[ 1 + \frac{e_{kij} e_{jkl}}{C_{ijkl} \epsilon_{jk}} \right] \frac{\partial^2 U_1}{\partial x_j \partial x_k} = \rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} \quad (\text{II-11})$$

Nous pouvons alors écrire :

$$\frac{\partial^2 U_1}{\partial x_j \partial x_k} = \left( \frac{\rho}{C_{ijkl} + \frac{e_{kij} e_{jkl}}{\epsilon_{jk}}} \right) \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} \quad (\text{II-12})$$

En réécrivant l'expression (II-12) dans l'équation (II-10a), nous obtenons la relation suivante :

$$\frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = \left( \frac{e_{jkl}}{C_{ijkl} \epsilon_{jk} + e_{kij} e_{jkl}} \right) \rho \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2}$$

Dans l'équation (II-11), le terme  $\chi^2 = \frac{e_{kij} e_{jkl}}{C_{ijkl} \epsilon_{jk}}$  est appelé : « coefficient de couplage piézoélectrique » du matériau.

Le coefficient de couplage effectif [II-2] (ou coefficient de couplage électroacoustique [II-3] ) est défini par la quantité  $K^2 = \frac{\chi^2}{1 + \chi^2}$ , avec  $0 \leq K^2 \leq 1$ .

Pour le quartz, nous avons un coefficient de couplage faible, typiquement  $K^2 = 0,15\%$  [II-4].

- Matériaux viscoélastiques

Dans le cas de la couche sensible, supposée isotrope, nous pouvons être amenés à tenir compte d'une viscosité  $\eta_b$ . Son comportement mécanique peut être modélisé par un « solide de Voigt ».

Nous pouvons voir sur la Figure II-2 la représentation rhéologique d'un tel comportement. Celle-ci comprend un ressort (représentant l'élasticité linéaire de la couche  $\mu_b$ ) en parallèle avec un amortisseur (représentant ses pertes visqueuses  $\eta_b$ ).

Dans ce cas, l'équation (II-10a) s'écrit [II-5] :

$$\mu_b \frac{\partial^2 U_l}{\partial x_j \partial x_k} + \eta_b \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\partial^2 U_l}{\partial x_j \partial x_k} \right) = \rho_b \frac{\partial^2 U_i}{\partial t^2} \quad (\text{II-13})$$

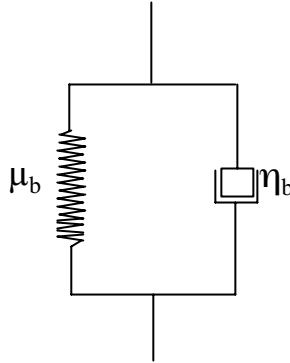


Figure II-2 : Représentation rhéologique d'un solide de Voight.

Dans le cas d'un matériau isotrope et non piézoélectrique, tous les coefficients du tenseur de piézoélectricité sont nuls, et les paramètres physiques deviennent scalaires puisqu'ils sont identiques dans toutes les directions de l'espace, donc en particulier sur les trois axes  $[0, x_1)$ ,  $[0, x_2)$ ,  $[0, x_3)$ .

### II.1.2.b Matériau liquide

- Liquide Newtonien

Le comportement mécanique des liquides visqueux Newtonien est régi par l'équation de Navier Stokes.

Celle-ci s'écrit :  $\rho_L \frac{\partial \vec{V}_L}{\partial t} + (\vec{V}_L \cdot \text{grad}) \vec{V}_L = \rho_L \cdot \vec{g} - \text{grad}(p) + \eta \Delta \vec{V}_L \quad (\text{II-14})$

où :

$V_L = \frac{\partial U_L}{\partial t}$  : Vitesse de déplacement des molécules de liquide ( $\text{m.s}^{-1}$ ).

Remarque : La vitesse de déplacement des molécules ne doit pas être confondue avec la vitesse de propagation de l'onde de Love  $V_p$ .

$\vec{g}$  : Accélération de la pesanteur ( $\text{m.s}^{-2}$ ).

$p$  : Pression (Pa).

Comme nous l'avons vu précédemment, les ondes de Love ont une polarisation transverse horizontale, c'est-à-dire que le déplacement acoustique  $U_L$  des molécules et donc la vitesse  $V_L$  de ce déplacement s'effectuent selon la direction  $x_2$ , et l'onde se propage suivant la direction  $x_1$ . Nous considérons donc le déplacement de ces molécules et leur vitesse transverse horizontale :  $U_2(x_1, x_3, t)$  et  $V_2(x_1, x_3, t)$ .

Nous pouvons voir sur la Figure II-3 le profil des vitesses de déplacement des molécules pour une coupe  $[O, x_2, x_3]$ .

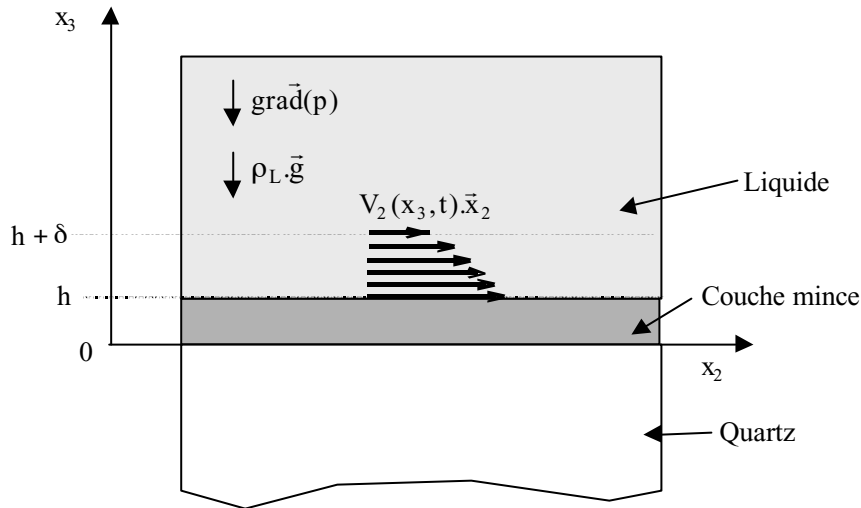


Figure II-3 : Profil de l'amplitude de la vitesse de déplacement des molécules dans un liquide visqueux pour une coupe  $[0, x_2, x_3]$ .

$$\text{On montre par le calcul que : } (\vec{V}_2 \cdot \text{grad} \vec{p}) = \begin{vmatrix} 0 & \frac{\partial}{\partial x_1} \\ V_2 & \frac{\partial}{\partial x_2} \\ 0 & \frac{\partial}{\partial x_3} \end{vmatrix} = V_2 \cdot \frac{\partial}{\partial x_2} = 0$$

De plus nous considérons le dispositif parfaitement horizontal, ce qui implique que par projection sur l'axe  $x_2$ , le gradient de pression hydrostatique, et le poids du liquide s'annulent. Ce qui nous donne à partir de (II-14) l'équation de Navier Stokes simplifiée :

$$\rho_L \frac{\partial V_2}{\partial t} = \eta \left( \frac{\partial^2 V_2}{\partial x_3^2} + \frac{\partial^2 V_2}{\partial x_1^2} \right) \Leftrightarrow \rho_L \frac{\partial^2 U_2}{\partial t^2} = \eta \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_3^2} + \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_1^2} \right) \quad (\text{II-15})$$

Remarque :

Ce raisonnement revient à modéliser le comportement rhéologique du liquide Newtonien par un amortisseur (cf. ), et écrire l'équation (II-1) en milieu liquide sous la forme :

$$T_{ij} = \eta \frac{\partial S_{kl}}{\partial t} \quad (II-16)$$

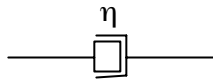


Figure II-4 : Représentation rhéologique d'un liquide Newtonien.

Puis nous appliquons l'équation fondamentale de la dynamique, nous obtenons ainsi l'équation (II-15) pour une onde T.H. pure.

L'équation (II-15) tient compte d'un liquide visqueux ayant un comportement mécanique purement dissipatif, on dit qu'il est Newtonien. Il existe un autre type de comportement mécanique dit Maxwellien.

- Liquide Maxwellien

La représentation rhéologique du liquide Maxwellien comporte un ressort et un amortisseur. Elle est différente de la représentation rhéologique du solide de Voight, ces éléments étant ici placés en série (cf. Figure II-5).

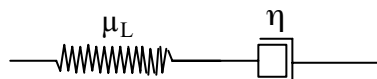


Figure II-5 : Représentation rhéologique d'un liquide de Maxwell.

Une contribution élastique  $\mu_L$  est rajoutée dans la relation contrainte déformation, celle-ci s'écrit alors :

$$T_{ij} + \tau \frac{\partial T_{ij}}{\partial t} = \eta \frac{\partial S_{kl}}{\partial t} \quad (II-17)$$

avec  $\tau = \frac{\eta}{\mu_L}$  puis nous appliquons l'équation fondamentale de la dynamique, et nous obtenons l'équation de propagation de l'onde dans le liquide de Maxwell.

$$\rho_L \left( \frac{\partial V_2}{\partial t} + \tau \frac{\partial^2 V_2}{\partial t^2} \right) = \eta \left( \frac{\partial^2 V_2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 V_2}{\partial x_3^2} \right) \quad (\text{II-18})$$

Le milieu liquide peut être électriquement conducteur. Dans ce cas, l'équation de Poisson pour un milieu isotrope et non piézoélectrique s'écrit [II-5] :

$$\frac{\partial}{\partial x_j} \left( -\sigma_L \frac{\partial U_4}{\partial x_k} + \frac{\partial D_j}{\partial t} \right) = q_e \Leftrightarrow \varepsilon_L \frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} \right) + \sigma_L \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = -q_e$$

Où  $q_e$  représente la charge ionique du milieu.

$$\text{Soit } (\sigma_L + j\omega\varepsilon_L) \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = -q_e \quad (\text{II-19})$$

Nous considérons une variation temporelle de l'onde en  $e^{j\omega t}$ .

Remarque :

Afin de simplifier la résolution, une conductivité critique  $\sigma_c$  est définie (cf. annexe D).

Dans le cas de solutions ioniques conductrices telles que  $\sigma \geq 2\sigma_c$ , on observe un phénomène de saturation pour lequel les ions chargés se redistribuent rapidement dans le liquide au voisinage de la surface de la couche guidante. Il apparaît ainsi à l'interface Couche guidante / liquide une « couche double » équivalente à un plan métallique qui court-circuite le champ électrique de l'onde et l'empêche d'interagir avec les ions en solution.

Nous pouvons alors modéliser le comportement électrique de la solution en utilisant l'équation de Poisson pour un liquide non chargé.

Ainsi, dans le cas où  $\sigma \geq 2\sigma_c$  l'équation (II-19) s'écrit :

$$\left( \varepsilon_L - j \frac{\sigma_L}{\omega} \right) \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0 \quad (\text{II-20})$$

II.1.2.c Bilan des équations régissant la propagation des ondes acoustiques T.H. volumiques

Nous récapitulons dans le Tableau II-1 les différentes équations de propagations acoustiques et électriques utilisées dans les matériaux qui composent la ligne à retard à onde de Love. Nous considérons une onde T.H., ayant un comportement temporel en  $e^{j\omega t}$  (cf. § II.1.3).

MILIEU	PROPRIETES PHYSIQUES		EQUATIONS DE PROPAGATION	réf.
	Mécaniques	Electriques		
Substrat de quartz	élastique, non visqueux, anisotrope	piézoélectrique, isolant électrique	$C_{ijkl} \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_j \partial x_k} + e_{kij} \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = -\omega^2 \rho_s U_2$	(II-10a)
			$e_{jkl} \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_j \partial x_k} - \epsilon_{jk} \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-10b)
Couche guidante de SiO <sub>2</sub>	élastique, non visqueuse, isotrope	non piézoélectrique, isolant électrique	$\mu_h \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_j \partial x_k} = -\omega^2 \rho_h U_2$	(II-21)
			$\epsilon_h \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-22)
Couche sensible élastique	élastique, non visqueuse, isotrope	non piézoélectrique, isolant électrique	$\mu_b \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_j \partial x_k} = -\omega^2 \rho_b U_2$	(II-23)
			$\epsilon_b \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-24)
Couche sensible viscoélastique	viscoélasticité de Voight, isotrope	non piézoélectrique, isolant électrique	$(\mu_b + j\omega\eta_b) \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_j \partial x_k} = -\omega^2 \rho_b U_2$	(II-25)
			$\epsilon_b \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-26)
Liquide Newtonien	viscosité Newtonienne, isotrope	non piézoélectrique, électriquement chargé et conducteur	$j\omega\eta \left( \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_3^2} \right) = -\omega^2 \rho_L U_2$	(II-27)
			$(\epsilon_L - j \frac{\sigma}{\omega}) \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-28)
Liquide Maxwellien	viscosité Maxwellienne, isotrope	non piézoélectrique, électriquement chargé et conducteur	$\frac{j\omega\eta}{1 + j\omega \frac{\eta}{\mu_L}} \left( \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2 U_2}{\partial x_3^2} \right) = -\omega^2 \rho_L U_2$	(II-29)
			$(\epsilon_L - j \frac{\sigma}{\omega}) \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-20)
Air		non piézoélectrique, électriquement non chargé et non conducteur	$\epsilon_0 \frac{\partial^2 U_4}{\partial x_j \partial x_k} = 0$	(II-30)

Tableau II-1 : Equations régissant la propagation des ondes acoustiques T.H. et du potentiel électrique associé dans chaque matériau constituant la ligne à retard à ondes de Love.

II.1.3 Conditions aux limites

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, les ondes de Love sont générées en plaçant des transducteurs interdigités avec des doigts parallèles à l'axe cristallographique  $X$  du quartz. Ce choix d'orientation permet la génération d'une onde T.H. pure dans le plan  $[0, x_1, x_3)$ . L'expression générale des déplacements acoustiques et du potentiel électrique d'une onde plane T.H. se propageant dans le plan  $[0, x_1, x_3)$  est de la forme (cf. équation (I-1)) :

$$U_2(x_1, x_3, t) = U_{02} e^{-jk_3 x_3} e^{j(\omega t - kx_1)}$$

$$U_4(x_1, x_3, t) = U_{04} e^{-jk_3 x_3} e^{j(\omega t - kx_1)}$$

$U_{02}$  et  $U_{04}$  sont respectivement les amplitudes des déplacements acoustiques et électriques en  $x_3 = 0$ .

$k$  est le nombre d'onde longitudinal et  $k_3$  est le nombre d'onde transverse vertical, qui pourra être différent selon le milieu dans lequel se propage l'onde, cf. Figure II-6.

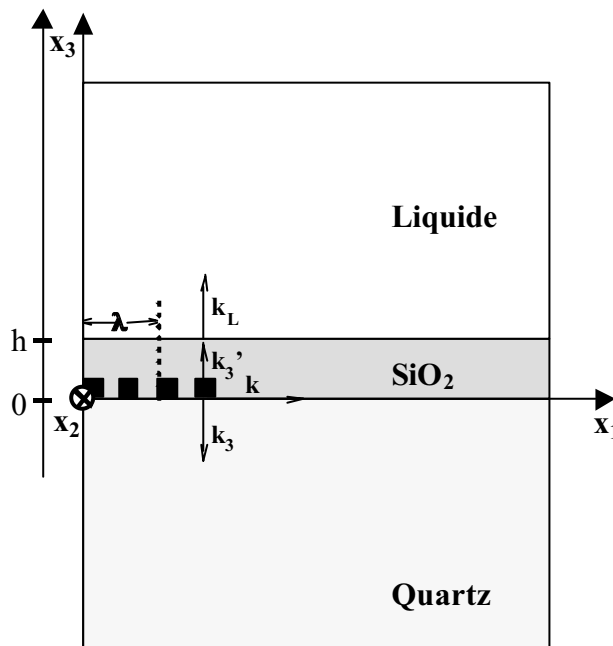


Figure II-6 : Modèle tricouche d'une structure à ondes de Love.

La périodicité spatiale sur  $x_1$ , imposée par la périodicité des électrodes des transducteurs ( $\lambda$ ), entraîne :

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\omega}{V_p}$$



- $V_p$  : vitesse de phase de l'onde T.H. ( $m.s^{-1}$ )  
 $\omega$  : pulsation angulaire ( $rad.s^{-1}$ )  
 $\lambda$  : périodicité des électrodes des transducteurs (m)

La résolution analytique de la propagation des ondes de Love nécessite de connaître les conditions aux limites mécaniques et électriques de la structure multicouche. Ces conditions sont les suivantes :

- Dans le substrat de quartz :  
L'onde, générée à l'interface  $x_3 = 0$ , se propage suivant les  $x_3 < 0$ .  
L'amplitude de l'onde est nulle pour  $x_3 \rightarrow -\infty$ .
- Interface solide / solide :  
Continuité du déplacement acoustique  $U_2(x_1, x_3, t)$ .  
Continuité de la contrainte normale  $T_{32}(x_1, x_3, t)$ .  
Continuité du potentiel électrique  $U_4(x_1, x_3, t)$ .  
Continuité du déplacement électrique normal  $D_3(x_1, x_3, t)$ .
- Interface solide / liquide :  
Continuité du déplacement acoustique  $U_2(x_1, x_3, t)$ .  
Continuité de la contrainte normale  $T_{32}(x_1, x_3, t)$ .  
Continuité du potentiel électrique  $U_4(x_1, x_3, t)$ .  
Continuité du déplacement électrique normal  $D_3(x_1, x_3, t)$ .

Dans ce cas imposer ces conditions de continuité mécaniques implique que nous négligeons les glissements éventuels sur les interfaces solide / liquide.

- Dans le liquide :  
L'onde se propage suivant les  $x_3 > 0$ .  
L'amplitude de l'onde est nulle pour  $x_3 \rightarrow +\infty$ .

## ***II.2 Résolution analytique***

Pour chaque type de dispositif à ondes de Love, nous souhaitons effectuer une résolution analytique nous permettant de déterminer une équation de dispersion simple, afin de connaître la vitesse de phase de l'onde. Comme nous le verrons certaines approximations nous

permettront de mener ces calculs à leur terme. Nous étudierons dans cette partie un modèle trois couches (quartz, SiO<sub>2</sub>, liquide), ainsi qu'un modèle quatre couches (quartz, SiO<sub>2</sub>, couche sensible, liquide).

### II.2.1 Modèle trois couches (quartz, SiO<sub>2</sub>, liquide)

#### II.2.1.a Expression des ondes dans le volume des matériaux

Nous exprimons les déplacements acoustiques ( $U_2(x_1, x_3, t)$ ) et les contraintes normales ( $T_{32}(x_1, x_3, t)$ ) dans le volume de chaque matériau de la Figure II-6. Dans la thèse de Céline Zimmermann [II-9] ces expressions (déplacements et contraintes) ont été déterminées dans le quartz, le SiO<sub>2</sub>, et la couche sensible.

#### Quartz.

L'expression des paramètres mécaniques du quartz ont été écrits en négligeant la piézoélectricité de celui-ci.

$$\boxed{U_{2s}(x_1, x_3, t) = U_{0s} e^{\left(\frac{kC_{46}}{C_{44}} + k_1\chi_s\right)x_3} e^{j(\omega t - kx_1)}} \quad \text{avec } x_3 < 0 \quad (\text{II-31})$$

$$\chi_s = Ca \sqrt{1 - \frac{\rho_s V_p^2}{Ca^2 C_{44}}} \quad \text{où } Ca \text{ est la constante d'anisotropie dépendant du substrat.}$$

$$Ca = \sqrt{\frac{C_{66}}{C_{44}} - \frac{C_{46}^2}{C_{44}^2}}.$$

$$\boxed{T_{32s}(x_1, x_3, t) = C_{46} \frac{\partial U_{2s}(x_1, x_3, t)}{\partial x_1} + C_{44} \frac{\partial U_{2s}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3}} \quad (\text{II-32})$$

#### SiO<sub>2</sub>.

$$\boxed{U_{2h}(x_1, x_3, t) = U_{0h} \cos(k\chi_h x_3 + \varphi) e^{j(\omega t - kx_1)}} \quad \text{avec } 0 \leq x_3 \leq h \quad (\text{II-33})$$

$$\chi_h = \sqrt{\frac{\rho_h V_p^2}{\mu_h} - 1}.$$

$$\boxed{T_{32h}(x_1, x_3, t) = \mu_h \frac{\partial U_{2h}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3}} \quad (\text{II-34})$$

### Liquide.

Afin de pouvoir exprimer l'expression de la vitesse du déplacement acoustique des molécules de liquide, nous considérons les variables  $x_1, x_3, t$  indépendantes et nous posons :

$$U_{2L}(x_1, x_3, t) = R(x_1) \times S(x_3) \times \Theta(t) \quad (\text{II-35})$$

avec  $R(x_1)\Theta(t) = e^{-jkx_1}e^{j\omega t}$  : fonction propagation de l'onde suivant l'axe  $[O, x_1]$ .

Nous souhaitons exprimer la fonction  $S(x_3)$  qui représente la propagation de l'onde suivant l'axe  $x_3$ , nous pourrions ainsi déterminer le vecteur d'onde de propagation  $k_L$  dans le liquide, et déduire le profil des déplacements  $U_2(x_3)$ , proportionnel à  $j\omega$  ( $= \partial / \partial t$ ) près au profil des vitesses  $V_2(x_3)$  du déplacement des molécules dans le liquide.

L'équation (II-35) insérée dans l'équation (II-15) nous donne :

$$-\rho_L e^{-jkx_1} \omega^2 e^{j\omega t} S(x_3) = j\omega \eta \left\{ e^{-jkx_1} e^{j\omega t} \frac{\partial^2 S(x_3)}{\partial x_3^2} + (-jk)^2 e^{-jkx_1} e^{j\omega t} S(x_3) \right\}$$

Après simplification de la relation précédente, nous obtenons l'équation :

$$\frac{1}{S(x_3)} \frac{\partial^2 S(x_3)}{\partial x_3^2} = j \frac{\rho_L \omega}{\eta} + k^2 \quad (\text{II-36})$$

La vitesse d'une onde sonore est généralement plus grande dans un solide que dans un liquide, nous pouvons écrire  $k^2 \ll \frac{\omega \rho_L}{\eta}$  [II-6]. Cette approximation peut se vérifier en effectuant une application numérique avec des valeurs typiques des paramètres physiques des dispositifs à ondes de Love.

Nous obtenons  $k^2 \approx 2.10^{10} \text{ m}^{-2}$ , et  $\frac{\omega \rho_L}{\eta} \approx 6.10^{13} \text{ m}^{-2}$ ,

avec :  $\lambda = 40 \text{ } \mu\text{m}$ ,  $f = 100 \text{ MHz}$ ,  $\rho_L = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $\eta = 10 \text{ cP}$ .

Ainsi, l'équation (II-36) peut se réduire à l'expression suivante :

$$\frac{1}{S(x_3)} \frac{\partial^2 S(x_3)}{\partial x_3^2} = j \frac{\rho_L \omega}{\eta}$$

L'équation précédente a pour solution:  $S(x_3) = S_{01} e^{-(1+j)k_L x_3} + S_{02} e^{(1+j)k_L x_3}$  (II-37)

avec  $k_L = \sqrt{\frac{\omega \rho_L}{2\eta}}$ .

Les conditions aux limites dans le liquide impliquent que les déplacements acoustiques se font suivant les  $x_3$  positifs, pour s'annuler en  $x_3 \rightarrow +\infty$ , ce qui permet d'annuler le second terme de l'équation (II-37).

Les expressions (II-35), et (II-37) permettent d'écrire l'expression générale du déplacement acoustique T.H. :

$$U_{2L}(x_1, x_3, t) = U_{0L} e^{-(1+j)k_L x_3} e^{j(\omega t - k x_1)} \quad (\text{II-38})$$

Nous pouvons alors déterminer la profondeur de pénétration  $\delta$  de l'onde lorsque la vitesse est réduite d'un facteur 1/e suivant les  $x_3 > 0$ .

En appliquant cette définition à l'équation (II-38), nous trouvons la même expression que certains auteurs dans le cas des ondes T.H. cf. (§ I-2.2a) :

$$\delta = \frac{1}{k_L} = \sqrt{\frac{2\eta}{\omega \rho_L}} \quad (\text{II-39})$$

Remarque : Cette expression de  $\delta$  (nécessaire car simple pour une résolution analytique) est une valeur approchée de la profondeur de pénétration réelle. Elle a été déterminée par S. J. Martin et A. J. Ricco [II-6] dans le cas des ondes transverses horizontales se propageant dans

un milieu liquide visqueux. Elle a également été utilisée par différents auteurs travaillant sur les ondes T.H. en milieu liquide [II-7], [II-8].

Une expression rigoureuse de  $\delta$  peut être déterminée en utilisant les solutions de l'équation de Navier-Stokes à deux dimensions soit l'équation (II-36). Cette dernière est prise en compte dans le cadre de la résolution numérique, et comme nous le verrons dans le paragraphe III.1, nous avons une bonne adéquation entre les deux résolutions.

Nous pouvons écrire l'expression de la contrainte normale dans le liquide :

$$T_{32L}(x_1, x_3, t) = j\omega\eta \frac{\partial U_{2L}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \quad (\text{II-40})$$

### II.2.1.b Prise en compte des conditions aux interfaces

Les expressions des déplacements acoustiques dans chaque matériau volumique vont nous permettre d'écrire les équations de continuité à chaque interface de notre système.

en  $x_3 = h$  (interface  $\text{SiO}_2$  / liquide).

Continuité de la contrainte normale  $T_{32}$ , expressions (II-34), et (II-40) :

$$\mu_h \left. \frac{\partial U_{2h}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \right|_{x_3=h^-} = j\omega\eta \left. \frac{\partial U_{2L}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \right|_{x_3=h^+}$$

$$\Leftrightarrow -k\chi_h \mu_h U_{0h} \sin(k\chi_h h + \varphi) e^{j(\omega t - kx_1)} = -(1+j)k_L \eta U_{0L} e^{-(1+j)k_L h} e^{j(\omega t - kx_1)} \quad (\text{II-41})$$

Continuité du déplacement acoustique T.H., expressions (II-33), et (II-38) :

$$U_{2h}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=h^-} = U_{2L}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=h^+}$$

$$\Leftrightarrow j\omega U_{0h} \cos(k\chi_h h + \varphi) e^{j(\omega t - kx_1)} = U_{0L} e^{-(1+j)k_L h} e^{j(\omega t - kx_1)} \quad (\text{II-42})$$

En simplifiant les équations (II-41) et (II-42), nous obtenons le système suivant :

$$\begin{cases} (1+j)k_L U_{0L} e^{-(1+j)k_L h} \eta = k\chi_h \mu_h U_{0h} \sin(k\chi_h h + \varphi) & (\text{a}) \\ U_{0L} e^{-(1+j)k_L h} = j\omega U_{0h} \cos(k\chi_h h + \varphi) & (\text{b}) \end{cases} \quad (\text{II-43})$$

$$\begin{aligned} \frac{(II-43.a)}{(II-43.b)} &\Leftrightarrow (1+j)k_L = \frac{k\chi_h \mu_h}{j\omega \eta} \tan(k\chi_h h + \varphi) \\ &\Leftrightarrow \tan(k\chi_h h + \varphi) = \frac{(1+j)k_L j\omega \eta}{k\chi_h \mu_h} \end{aligned} \quad (II-44)$$

$$\text{Ou encore } k = \frac{1}{\chi_h h} \arctan \left\{ (-1+j) \frac{k_L V_p \eta}{\mu_h \chi_h} \right\} - \frac{\varphi}{\chi_h h} \quad (II-45)$$

en  $x_3 = 0$ , (interface  $\text{SiO}_2 / \text{Quartz}$ ).

A cette interface, nous pouvons exprimer la quantité  $\varphi$ .

Continuité du déplacement acoustique, expressions (II-31) et (II-33) :

$$U_{2s}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=0^-} = U_{2h}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=0^+} \Rightarrow U_{0s} = U_{0h} \cos(\varphi) \quad (II-46)$$

Continuité de la contrainte normale expressions (II-32) et (II-34) :

$$C_{46} \frac{\partial U_{2s}(x_1, x_3, t)}{\partial x_1} \Big|_{x_3=0^-} + C_{44} \frac{\partial U_{2s}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \Big|_{x_3=0^-} = \mu_h \frac{\partial U_{2h}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \Big|_{x_3=0^+}$$

après simplification, et utilisation des équations (II-41) et (II-46), il vient :

$$U_{0h} k C_{44} \chi_s \cos(\varphi) = -U_{0h} k \mu_h \chi_h \sin(\varphi) \Rightarrow \varphi = \arctan \left( -\frac{C_{44} \chi_s}{\mu_h \chi_h} \right) \quad (II-47)$$

D'où l'équation (II-45) s'écrit :

$$k\chi_h h = \arctan \left\{ (-1+j) \frac{k_L V_p \eta}{\mu_h \chi_h} \right\} + \arctan \left( \frac{C_{44} \chi_s}{\mu_h \chi_h} \right) \quad (II-48)$$

Afin de pouvoir exprimer le vecteur d'onde  $k$ , nous devons extraire la partie réelle du second terme de l'équation (II-48). Nous utilisons pour cela l'identité (cf. annexe E) :

$$\arctan\{(-v + jv)\} = \frac{1}{2} \arctan \left( \frac{-2v}{1-2v^2} \right) + j \frac{1}{4} \ln \left( \frac{v^2 + (v+1)^2}{v^2 + (v-1)^2} \right) \quad (II-49)$$

Une application numérique tenant compte des valeurs de vitesses de phase des ondes de Love, pour des longueurs d'onde de l'ordre de  $\lambda \approx 40 \mu\text{m}$  dans des milieux liquides Newtonien montre que nous avons  $2\left(\frac{k_L V_p \eta}{\mu_h \chi_h}\right)^2 \approx 2.10^{-4}$ , nous négligeons donc ce terme devant 1.

Nous pouvons alors déterminer l'équation de dispersion suivante, qui relie les paramètres physiques du capteur au vecteur d'onde.

$$\boxed{kh = \frac{1}{\chi_h} \left\{ \arctan\left(\frac{C_{44}\chi_s}{\mu_h \chi_h}\right) - \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{2k_L V_p \eta}{\mu_h \chi_h}\right) \right\}} \quad (\text{II-50})$$

### II.2.1.c Estimation des pertes viscoélastiques en régime Newtonien

Le terme imaginaire du second membre de l'équation (II-48) représente une contribution des pertes acoustiques. Ce terme aurait été identifié à  $\alpha_1$  dans l'équation (I-2), pour cela il aurait fallu tenir compte de l'expression complexe du vecteur d'onde pour toute la résolution analytique du modèle. Cette prise en compte entraîne une résolution très complexe voire impossible analytiquement.

Afin de déterminer la valeur des pertes acoustiques, nous proposons d'utiliser la propriété démontrée par Vellekoop *et al.* (cf. § I.2.2.c), concernant la relation entre les pertes visqueuses et la variation de vitesse de phase relative due aux perturbations visqueuses en régime Newtonien, [équations (I-7) et (I-8)].

$$\frac{\Delta\gamma}{k} = -\frac{\Delta V_p}{V_p} \quad \Leftrightarrow \quad \boxed{\Delta\gamma = -\frac{2\pi}{\lambda} \frac{\Delta V_p}{V_p}} \quad (\text{II-51})$$

Avec :  $\gamma$  : pertes acoustiques en transmission ( $\text{m}^{-1}$ ).  
 $\lambda$  : longueur d'onde (m).  
 $V_p$  : vitesse de phase de l'onde de Love ( $\text{m.s}^{-1}$ ).

Remarque : La grandeur  $\gamma$  est homogène à un vecteur d'onde et représente l'atténuation de l'onde. Cette grandeur permet d'estimer l'influence de la viscosité sur l'amplitude de l'onde

de Love qui se propage tout au long du chemin acoustique. Ainsi la variation d'amplitude sera exprimée par  $\exp(-\gamma.x)$ , où  $x$  représente la distance parcourue, soit  $\exp(-\alpha_1.x_1)$  dans l'équation (I-2).

### II.2.2 Modèle quatre couches (quartz, $\text{SiO}_2$ , couche sensible, liquide)

Pour une application en mode détection de polluant, une couche supplémentaire sélective et sensible à l'espèce que l'on souhaite détecter est nécessaire. Cette couche sensible va modifier les propriétés de propagation de l'onde.

Ainsi, les conditions de continuité mécaniques à l'interface  $\text{SiO}_2$  / couche sensible (continuité de la contrainte normale et du déplacement transverse horizontal) impliquent qu'une partie de l'onde acoustique sera également guidée dans la couche sensible. Les propriétés mécaniques de cette couche supplémentaire étant différentes de celles du  $\text{SiO}_2$ , les couplages mécaniques à l'interface couche sensible / liquide seront différents. Une résolution analytique spécifique à ce système doit donc être mise en œuvre.

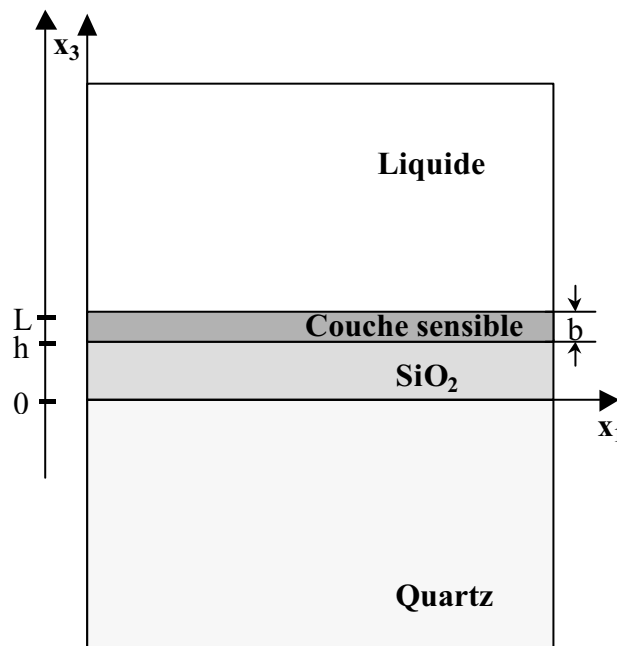


Figure II-7 : Modèle quadricouche d'une structure à ondes de Love.

Afin d'exprimer les équations de propagation et de dispersion de ce modèle (Figure II-7), nous utilisons le même raisonnement que précédemment.



II.2.2.a Expression des ondes dans le volume des matériaux

Les expressions des ondes dans le quartz, la couche de SiO<sub>2</sub> et le liquide ont été écrites dans le paragraphe II.2.1.a.

Les expressions du déplacement acoustique  $U_{2b}(x_1, x_3, t)$  et de la contrainte normale  $T_{32b}(x_1, x_3, t)$  dans la couche sensible s'écrivent [II-9] :

$$U_{2b}(x_1, x_3, t) = U_{0b} \cos(k_1 \chi_b x_3 + \varphi') e^{j(\omega t - k x_1)} \quad \text{avec } 0 \leq x_3 \leq h \quad (\text{II-52})$$

$$\text{avec } \chi_b = \sqrt{\frac{\rho_b V_p^2}{\mu_b} - 1}.$$

$$T_{32b}(x_1, x_3, t) = \mu_b \frac{\partial U_{2b}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \quad (\text{II-53})$$

Nous posons  $L = h + b$  avec  $b$  : épaisseur de la couche sensible.

II.2.2.b Prise en compte des conditions aux interfaces.

Les expressions des déplacements acoustiques dans chaque matériau volumique vont nous permettre d'écrire les équations de continuité à chaque interface de notre système.

en  $x_3 = L$  (interface couche sensible / liquide).

Continuité de la contrainte normale  $T_{32}$ , expressions (II-53), et (II-40) :

$$\mu_b \left. \frac{\partial U_{2b}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \right|_{x_3=L^-} = j\omega\eta \left. \frac{\partial U_{2L}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \right|_{x_3=L^+}$$

$$\Leftrightarrow -k\chi_b \mu_b U_{0b} \sin(k\chi_b L + \varphi') e^{j(\omega t - k x_1)} = -(1+j)k_L \eta U_{0L} e^{-(1+j)k_L L} e^{j(\omega t - k x_1)} \quad (\text{II-54})$$

Continuité du déplacement acoustique (II-52), et (II-38) :

$$U_{2b}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=L^-} = U_{2L}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=L^+}$$

$$\Leftrightarrow j\omega U_{0b} \cos(k\chi_b L + \varphi') e^{j(\omega t - k x_1)} = U_{0L} e^{-(1+j)k_L L} e^{j(\omega t - k x_1)} \quad (\text{II-55})$$

En suivant la même démarche qu'à l'interface  $\text{SiO}_2$  / liquide du modèle trois couches, (cf. § II.2.1.b), nous obtenons :

$$k = \frac{1}{\chi_b L} \arctan \left\{ (-1 + j) \frac{k_L V_p \eta}{\mu_b \chi_b} \right\} - \frac{\varphi'}{\chi_b L} \quad (\text{II-56})$$

en  $x_3 = h$  (interface  $\text{SiO}_2$  / couche sensible).

A cette interface, nous pourrions exprimer la quantité  $\varphi'$ .

Continuité du déplacement acoustique, expressions (II-33) et (II-52) :

$$U_{2h}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=h^-} = U_{2b}(x_1, x_3, t) \Big|_{x_3=h^+}$$

$$\Rightarrow U_{0h} \cos(k\chi_h h + \varphi) = U_{0b} \cos(k\chi_b h + \varphi') \quad (\text{II-57})$$

Continuité de la contrainte normale expressions (II-34) et (II-53) :

$$\mu_h \frac{\partial U_{2h}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \Big|_{x_3=h^-} = \mu_b \frac{\partial U_{2b}(x_1, x_3, t)}{\partial x_3} \Big|_{x_3=h^+}$$

$$-k\chi_h \mu_h U_{0h} \sin(k\chi_h h + \varphi) = -k\chi_b \mu_b U_{0b} \sin(k\chi_b h + \varphi') \quad (\text{II-58})$$

$$\frac{(\text{II-58})}{(\text{II-57})} \Leftrightarrow \mu_h \chi_h \tan(k\chi_h h + \varphi) = \mu_b \chi_b \tan(k\chi_b h + \varphi')$$

$$\Rightarrow \varphi' = \arctan \left\{ \frac{\mu_h \chi_h}{\mu_b \chi_b} \tan(k\chi_h h + \varphi) \right\} - k\chi_b h \quad (\text{II-59})$$

en  $x_3 = 0$  (interface Quartz /  $\text{SiO}_2$ ).

La quantité  $\varphi$  a été exprimée dans le paragraphe précédent, c'est l'expression (II-47).

Nous injectons cette expression dans (II-59), et nous obtenons de manière univoque l'expression de  $\varphi'$  :

$$\varphi' = \arctan \left\{ \frac{\mu_h \chi_h}{\mu_b \chi_b} \tan \left[ k\chi_h h - \arctan \left( \frac{C_{44} \chi_s}{\mu_h \chi_h} \right) \right] \right\} - k\chi_b h \quad (\text{II-60})$$

Nous remplaçons  $\varphi'$  par sa valeur dans l'expression (II-56), cela nous donne :

$$k = \frac{1}{\chi_b L} \arctan \left\{ (-1 + j) \frac{k_L V_p \eta}{\mu_b \chi_b} \right\} - \frac{1}{\chi_b L} \arctan \left\{ \frac{\mu_h \chi_h}{\mu_b \chi_b} \tan \left[ k \chi_h h - \arctan \left( \frac{C_{44} \chi_s}{\mu_h \chi_h} \right) \right] \right\} + \frac{k \chi_b h}{\chi_b L}$$

Après simplification de l'équation précédente, nous obtenons la relation :

$$k \chi_b b = \arctan \left\{ (-1 + j) \frac{k_L V_p \eta}{\mu_b \chi_b} \right\} - \arctan \left\{ \frac{\mu_h \chi_h}{\mu_b \chi_b} \tan \left[ k \chi_h h - \arctan \left( \frac{C_{44} \chi_s}{\mu_h \chi_h} \right) \right] \right\} \quad (\text{II-61})$$

Comme pour le cas précédent (quartz / SiO<sub>2</sub> / liquide, cf. § II.2.1), nous devons ici exprimer le vecteur d'onde réel. Pour cela la partie réelle est extraite du second membre de l'équation (II-61), en utilisant la relation (II-49). Ainsi, nous pouvons déterminer l'équation de dispersion pour un dispositif avec couche sensible, et la vitesse de phase de l'onde de Love en fonction de tous les paramètres physiques du capteur.

$$k \chi_b b = - \arctan \left\{ \frac{\mu_h \chi_h}{\mu_b \chi_b} \tan \left[ k \chi_h h - \arctan \left( \frac{C_{44} \chi_s}{\mu_h \chi_h} \right) \right] \right\} - \frac{1}{2} \arctan \left( \frac{k_L V_p \eta}{\mu_b \chi_b} \right) \quad (\text{II-62})$$

Afin de pouvoir estimer les pertes acoustiques, nous utilisons également la propriété décrite dans le paragraphe II.2.1.c. Le calcul s'effectue avec la relation (II-51).

### II.2.3 Discussion sur la résolution analytique

Notons tout d'abord que si nous ne considérons pas de liquide, c'est-à-dire  $\eta = 0$ , nous retrouvons les équations de dispersion des ondes de Love en milieu gazeux décrites dans la thèse de Céline Zimmermann.

La résolution analytique nous permet de déterminer, à partir des paramètres du capteur et du milieu de test la vitesse de phase de l'onde de Love. Nous pourrions ainsi estimer l'évolution de celle-ci lors de modifications des paramètres physiques du capteur, ou lors de l'évolution d'un paramètre perturbateur, comme par exemple la viscosité d'un liquide supposé Newtonien.

Les pertes visqueuses introduites sur la ligne à retard par le liquide sont estimées par une relation simple utilisant la vitesse de phase de l'onde. Cependant il n'est pas possible de les calculer avec une équation simple utilisant les paramètres physiques du dispositif, comme dans le cas de la vitesse de phase de l'onde de Love.

Ainsi, cette méthode permet de modéliser le comportement d'un capteur en conservant toute la signification physique des paramètres, qui interviennent directement dans l'expression permettant de calculer la vitesse de phase de l'onde. De plus, il est ainsi possible d'obtenir rapidement une première estimation de la sensibilité d'un capteur à un paramètre mécanique donné, en utilisant par exemple un logiciel de calcul formel type Maple V.

Cependant résoudre des équations analytiques pour un modèle multicouche s'avère faisable à condition de négliger en particulier tous les phénomènes électriques dus à la piézoélectricité du quartz, et à la conductivité électrique du liquide, mais aussi les pertes acoustiques. De même il apparaît difficile de considérer un comportement viscoélastique du liquide et de la couche sensible. Si nous souhaitons compléter le modèle afin d'intégrer des paramètres physiques supplémentaires, et affiner ainsi les calculs théoriques, la résolution analytique devient très complexe, nous devons adopter un autre type de résolution: la résolution numérique.

### ***II.3 Résolution numérique***

#### *II.3.1 Principe de la résolution numérique, et discussion*

Celle-ci utilise le même modèle et le même raisonnement que la résolution analytique, c'est-à-dire exprimer les déplacements acoustiques, la vitesse de déplacement acoustique, les contraintes mécaniques, les champs électriques et les déplacements électriques dans le volume de chaque matériau. Les conditions aux limites permettent de compléter le système d'équations obtenues. Cette méthode a été détaillée, et utilisée dans la thèse de Irène Esteban [II-10] pour les ondes transverses horizontales à mode de plaque, et reprend largement le travail de J.C. Andle [II-11].

Ici, nous avons adapté cette résolution dans le cadre des ondes de Love en milieu liquide, et en milieu gazeux, avec et sans couche sensible. Dans cette partie, nous avons utilisé les mêmes notations que Irène Esteban.

Il s'agit d'écrire de manière univoque l'expression des ondes partielles [équation (I-1)] se propageant dans les couches guidante et sensible. Pour cela le nombre d'onde normalisé  $\beta = \frac{k_3}{k}$  a été introduit, ce qui permet d'écrire le déplacement de l'onde sous la forme :

$$U_i(x_1, x_3, t) = \alpha_i \exp j(\omega t) \exp(-k \cdot x_1) \exp(-\beta k \cdot x_3) \quad i = 1, 2, 3, 4 \quad (\text{II-63})$$

$\alpha_i$  est le terme d'amplitude.  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont respectivement les amplitudes des déplacements sur  $x_1$ ,  $x_2$  et  $x_3$ .  $\alpha_4$  est l'amplitude du potentiel électrique.

$k$ ,  $k_2$ ,  $k_3$  sont les composantes respectives du vecteur d'onde sur les axes  $x_1$ ,  $x_2$  et  $x_3$ .  $k$  est le nombre d'onde longitudinal,  $k_2$  est le nombre d'onde transverse horizontal et  $k_3$  est le nombre d'onde transverse vertical.

Dans le cas d'un substrat de quartz de coupe ( $0^\circ$ ,  $\theta$ ,  $90^\circ$ ), où seules des ondes transverses horizontales peuvent être générées, nous recherchons des ondes partielles dont les composantes  $U_1(x_1, x_3, t)$  et  $U_3(x_1, x_3, t)$  sont nulles. L'équation (II-63) est utilisée pour substituer l'expression du déplacement acoustique  $U_2(x_1, x_3, t)$  et celle du potentiel électrique  $U_4(x_1, x_3, t)$  dans les équations aux ondes couplées du système (II-10). Nous obtenons ainsi une matrice  $[A_s]$  de dimension  $(4 \times 4)$  qui dépend du nombre d'onde normalisé  $\beta_s$ , de la masse volumique  $\rho_s$ , et des tenseurs de rigidités  $[C]$ , de piézoélectricité  $[e]$ , de permittivité électrique  $[\epsilon]$ , et de la vitesse de phase  $V_p$  de l'onde.

Puis en résolvant l'équation matricielle  $[A_s] \times [\alpha_s] = [0]$ , nous pouvons déterminer les nombres d'ondes  $\beta_s^{(n)}$  (solutions de  $\det(A) = 0$ ), puis les amplitudes  $\alpha_{i_s}^{(n)}$  des ondes partielles.

Dans le cas de couches isotropes non piézoélectriques, les amplitudes  $\alpha_i^{(n)}$ , et les nombres d'onde  $\beta^{(n)}$  peuvent être déterminés de manière analytique, toujours en se limitant aux ondes T.H. L'algorithme de recherche de ces ondes partielles T.H. dans chaque matériau constitutif du capteur est illustré sur la Figure II-8, étapes 1 à 4.

Puis en appliquant les conditions aux limites électriques et mécaniques comme précédemment (cf. § II.1.3), nous écrivons un système d'équations sous forme matricielle. Ce système s'écrit sous la forme :  $[B] \times [\xi] = 0$  (ces conditions aux limites sont détaillées en annexe E pour des dispositifs à ondes de Love en milieu gazeux et en milieu liquide, avec et sans couche sensible). En résolvant l'équation  $\det(B) = 0$ , nous pouvons calculer la vitesse de propagation de l'onde de Love.

Dans l'algorithme de calcul, l'application des conditions aux limites, le calcul de la matrice [B], de son déterminant, et la recherche de ses racines sont illustrés par les étapes 5 et 6 de la Figure II-8.

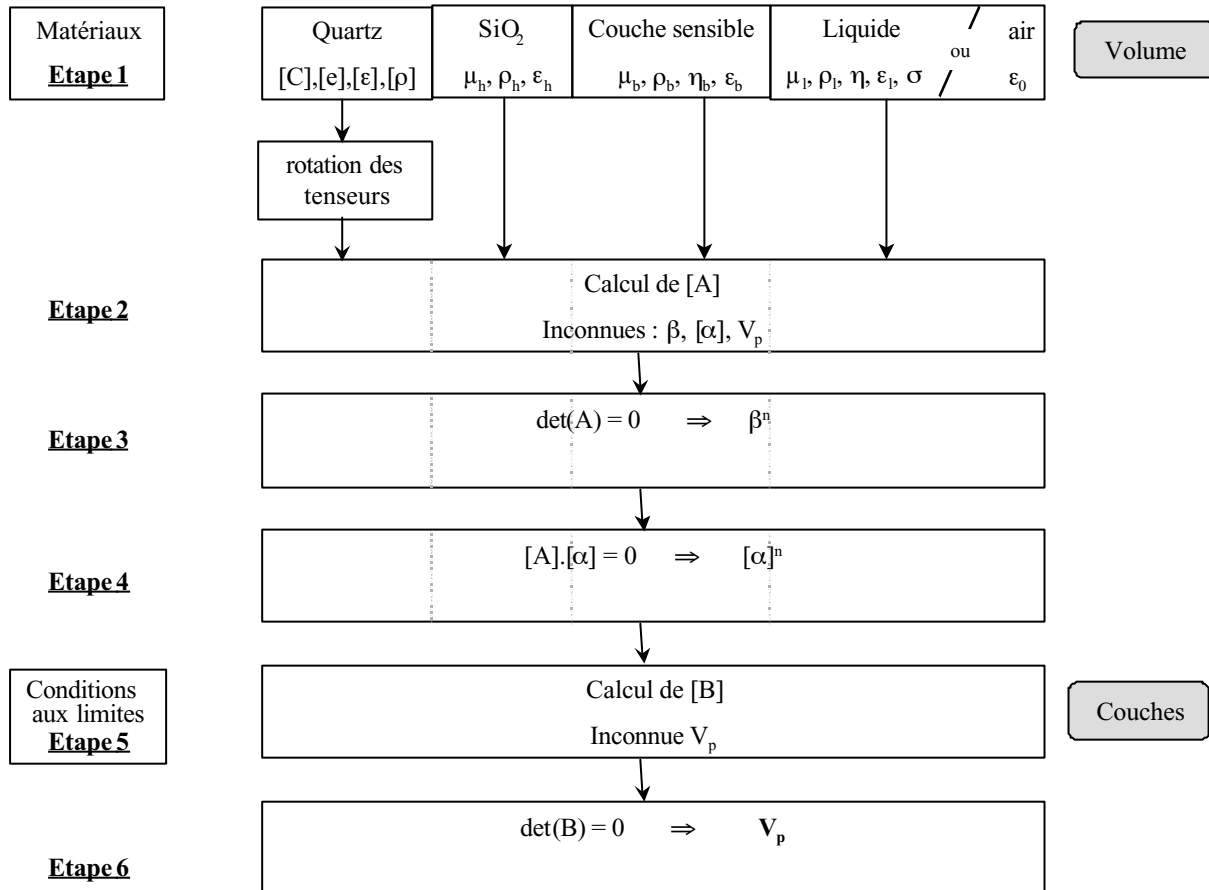


Figure II-8 : Algorithme pour la simulation de la vitesse de phase des ondes de Love.

Ainsi, nous pouvons calculer la vitesse de propagation de l'onde de Love pour une configuration donnée de la ligne à retard, en milieu liquide ou gazeux.

Dans le cadre de nos travaux, nous ne sommes pas allés jusqu'au bout de l'algorithme avec la résolution de  $[B] \times [\xi] = 0$  pour caractériser complètement l'onde de Love (calcul des  $U$ ). La raison est qu'une résolution numérique ne permet pas d'annuler exactement le déterminant de la matrice [B]. Ceci n'est pas indispensable dans un premier temps : l'information principale que nous pourrions utiliser pour une validation expérimentale avec un capteur fonctionnant en mode oscillateur, est en effet la vitesse de phase de l'onde de Love, sa valeur pourra être déterminée en recherchant les minimums de  $\det(B) = 0$ .

La programmation de cet algorithme a été mise en œuvre à l'aide du logiciel de calcul numérique Matlab, avec une approche modulaire permettant de conserver un programme principal lisible faisant appel à des sous modules.

Le premier d'entre eux permet de calculer tous les paramètres physiques du substrat de quartz, (piézoélectrique ou non), ayant une coupe permettant la génération des ondes transverses horizontales par les électrodes interdigitées. Cela revient à déterminer ces paramètres physiques pour une rotation selon les angles d'Euler ( $0^\circ$ ,  $\theta$ ,  $90^\circ$ ).

Le second module détermine les coefficients  $\beta^{(n)}$ , puis  $\alpha_i^{(n)}$  dans le cas du quartz pour une onde T.H.

Les coefficients  $\beta^{(n)}$  et  $\alpha_i^{(n)}$  dans le cas du  $\text{SiO}_2$ , ou d'une couche isotrope de façon générale, et du liquide, sont déterminés analytiquement. Les équations aux limites du système permettent d'exprimer la matrice [B], puis son déterminant. Ces expressions sont intégrées dans quatre autres modules logiciels, afin de déterminer respectivement la vitesse de phase de l'onde de Love dans le cas :

- d'un dispositif sans couche sensible en milieu gazeux,
- d'un dispositif avec couche sensible en milieu gazeux,
- d'un dispositif sans couche sensible en milieu liquide,
- d'un dispositif avec couche sensible en milieu liquide.

Les variables à rentrer dans le programme sont : la coupe du quartz, la longueur d'onde associée à la périodicité de la ligne à retard, l'épaisseur de  $\text{SiO}_2$ , puis les caractéristiques physiques de la couche sensible et/ou du liquide selon le système que l'on souhaite étudier.

L'un des inconvénients majeurs de cette résolution est qu'il est nécessaire pour calculer une vitesse dans le cas d'un dispositif donné, de faire tourner tout le programme : tracer une courbe en fonction de l'évolution d'un paramètre du système sera d'autant plus long que la précision voulue sera plus grande. Quelques améliorations ont été apportées afin de minimiser ce temps de calcul. Cependant, calculer une vitesse pour un système avec couche sensible en présence d'un liquide Newtonien avec une précision au  $\text{mm.s}^{-1}$ , nécessite environ 15 s dans le cas de cette résolution numérique alors qu'une fraction de seconde suffit dans le cas de la résolution analytique. Cette précision est pourtant parfois nécessaire : nous verrons en effet que les capteurs étudiés permettent de descendre à des seuils de détection au niveau des variations de propagation de l'onde acoustique largement inférieurs au ppm.

En revanche beaucoup plus de paramètres physiques du système peuvent être pris en compte avec la résolution numérique, notamment, les paramètres électriques.

#### *II.4 Conclusion*

Dans ce chapitre, nous avons pu estimer à l'aide d'une équation de dispersion la vitesse de propagation d'une onde de Love en fonction des paramètres mécaniques et électriques de la ligne à retard en configuration capteur ou non. En revanche déterminer les pertes acoustiques ou électriques (l'amplitude de l'onde), se révèle être très difficile. Nous pouvons toutefois estimer des valeurs de pertes dans le cas d'un milieu liquide Newtonien. Chacune des deux résolutions mises en œuvre, analytique et numérique, présente des avantages ainsi que des inconvénients.

La résolution analytique permet d'écrire une équation de dispersion et d'effectuer des calculs rapides. Elle peut être utilisée avec un logiciel de calcul simple, sans passer par de lourds traitements algorithmiques. Cependant, il est impossible de déterminer la vitesse de phase de l'onde en fonction des paramètres électriques de la ligne à retard et du milieu liquide.

La résolution numérique en revanche permet de tenir compte de l'ensemble des paramètres du système, et notamment de ses paramètres électriques. En revanche, les calculs sont très longs et nécessitent une mise en œuvre informatique et algorithmique plus lourde (environ 500 lignes de code).

Nous pouvons alors à l'aide de tous ces résultats, modéliser le comportement d'une ligne à retard en fonction des paramètres du dispositif et des différents milieux de test possibles.

Toutefois, en plus des différentes hypothèses simplificatrices, les résultats des simulations analytiques et numériques seront d'autant plus précises que les différents paramètres physiques seront pertinent, surtout dans le cas de couches minces, et pour des fréquences de travail de l'ordre de 100 MHz. Les calculs théoriques serviraient alors davantage de « guide » permettant d'expliquer les résultats expérimentaux.





**CHAPITRE III  
RESULTATS THEORIQUES.**



### *III.1 Comparaison des résolutions analytiques et numériques.*

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'il est possible de déterminer la vitesse de phase de l'onde numériquement (cf. § II.3) et analytiquement (équations (II-50) et (II-62)), pour des dispositifs, en présence d'un milieu liquide Newtonien.

Contrairement à la résolution numérique, la résolution analytique comporte les deux approximations suivantes : tout d'abord, nous avons intégré dans le calcul la relation de Navier Stokes réduite à une dimension en  $X_3$  (cf. § II.2.1.a) ; puis, la simplification des formules analytiques a été obtenue en considérant  $2\left(\frac{k_L V_p \eta}{\mu_h \chi_h}\right)^2 \ll 1$  (cf. § II.2.1.b)

La comparaison des résultats obtenus avec les deux types de résolution permet de valider les différents modules logiciels réalisés.

Pour cela nous définissons un **dispositif de test**, à ondes de Love avec les caractéristiques suivantes :

- périodicité spatiale des transducteurs associée à une longueur d'onde  $\lambda$  de 52  $\mu\text{m}$ ,
- un substrat de quartz de coupe ST ( $0^\circ$ ,  $\theta = 132,75^\circ$ ,  $90^\circ$ ),
- une couche guidante de  $\text{SiO}_2$  d'épaisseur 6  $\mu\text{m}$  (notée  $h = 6 \mu\text{m}$  en légende),
- s'il y a lieu, une couche sensible de PMMA de 100 nm. (notée  $b = 100 \text{ nm}$  en légende)

Les caractéristiques physiques de ces différents matériaux sont présentées en annexe C. La faible valeur du coefficient de couplage électroacoustique dans le cas du quartz nous a permis de négliger la piézoélectricité du quartz et de mener à son terme la résolution analytique.

Ainsi, afin de comparer les deux méthodes, nous négligeons également la piézoélectricité du quartz dans le cadre de la résolution numérique. Nous considérons un liquide de masse volumique fixe,  $10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ , avec une viscosité variant de 1 cP à 6 cP. Les résultats obtenus pour le calcul de la vitesse avec les deux méthodes sont exposés dans le Tableau III-1.

	Viscosité	0 cP	1 cP	2 cP	3 cP	4 cP	5 cP	6 cP
<b>Dispositif nu</b>	$V_p$ analytique ( $m.s^{-1}$ )	4711,9	4709,5	4708,5	4707,7	4707,1	4706,5	4706
	$V_p$ numérique ( $m.s^{-1}$ )	4710,9	4708,5	4707,5	4706,7	4706	4705,5	4705
	* Ecart relatif ( $\text{‰}$ )	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,23</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>
<b>Dispositif avec couche sensible</b>	$V_p$ analytique ( $m.s^{-1}$ )	4703,3	4700,8	4699,8	4699	4698,4	4697,8	4697,2
	$V_p$ numérique ( $m.s^{-1}$ )	4702,3	4699,8	4698,8	4698	4697,4	4696,8	4696,3
	* Ecart relatif ( $\text{‰}$ )	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,21</b>	<b>0,19</b>

\* Ecart relatif :  $\frac{V_{p,analytique} - V_{p,numérique}}{V_{p,analytique}}$

Tableau III-1 : Vitesses de phase de l'onde de Love calculées pour le dispositif de test avec et sans couche sensible en présence d'un liquide Newtonien.

Nous pouvons voir que le calcul des vitesses de phase de l'onde de Love présente une différence de l'ordre de  $1 m.s^{-1}$  entre les deux résolutions pour un dispositif avec et sans couche sensible. Cette différence (qui se traduit par un écart relatif de  $0,2 \text{ ‰}$  environ) est sensiblement la même pour le dispositif en milieu gazeux et avec des liquides newtoniens. Nous avons en fait un décalage des vitesses de phase de  $1 m.s^{-1}$  quelle que soit la valeur de la viscosité du liquide newtonien.

Dans le cas d'une résolution analytique plus rigoureuse, c'est à dire en tenant compte de la piézoélectricité du substrat de quartz, l'écart entre les vitesses de phase calculées analytiquement et numériquement devient beaucoup plus important (cf. III.2.2.a).

Afin d'étudier l'influence d'un paramètre sur la propagation de l'onde de Love, il est courant de déterminer la variation de vitesse de phase relative de l'onde (équation (III-1)) en fonction d'une variable d'influence.

$$\frac{\Delta V_p}{V_{p0}} = \frac{V_p - V_{p0}}{V_{p0}} \quad (\text{III-1})$$

Où  $V_p$  représente la vitesse de phase de l'onde de Love pour un état perturbé du système (une viscosité donnée par exemple ici), et  $V_{p0}$  représente la vitesse de phase de l'onde de Love pour l'état de référence du système. Dans le cas présent, nous utilisons comme système non perturbé et donc comme point de référence la vitesse de phase de l'onde en présence de l'eau pure ( $\eta = 1 \text{ cP}$ ).

Le Tableau III-1 nous permet de calculer la variation de vitesse relative du dispositif à ondes de Love en présence de l'eau pure ( $\eta = 1$  cP) en prenant comme référence le dispositif sans liquide (en milieu gazeux,  $\eta = 0$  cP).

Nous obtenons alors  $\Delta V_p/V_{pnu} = -424,5$  ppm

La Figure III-1 représente l'influence de la viscosité du liquide sur la variation de vitesse de phase relative de l'onde de Love, et montre une excellente adéquation entre la résolution numérique et analytique.

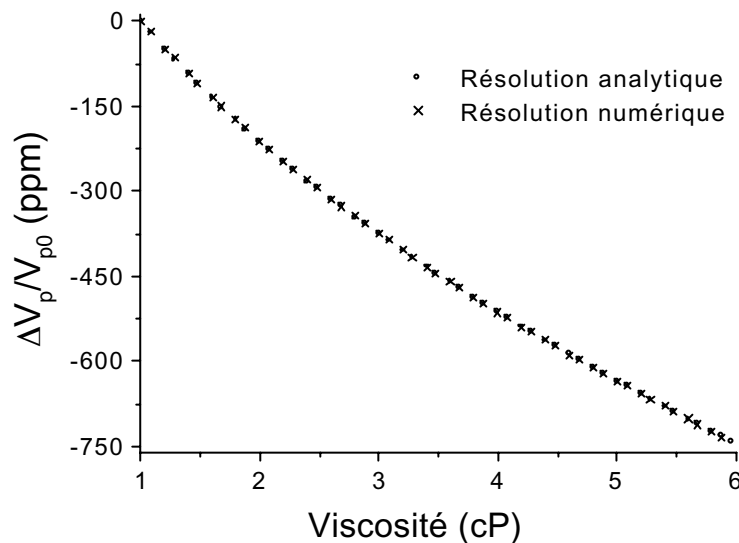


Figure III-1 : Vitesse de phase **relative** de l'onde de Love en fonction de la viscosité d'un liquide Newtonien (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$ ).

Afin de réaliser un capteur biochimique, nous devons considérer une couche sensible et sélective à l'espèce que l'on souhaite détecter. Le principal effet que nous devons privilégier afin d'améliorer la sensibilité de notre capteur est l'effet de masse (cf. § I.1.1.b). Cependant, contrairement aux détections en milieu gazeux, nous devons prendre en compte les paramètres physiques du liquide. Ainsi, dans un premier temps, nous nous attacherons à étudier les paramètres de propagation de l'onde pour un dispositif nu en fonction du milieu de test liquide.

Une étude similaire concernant les dispositifs à onde de Love a été menée dans la thèse de Céline Zimmermann pour des systèmes non dissipatifs en milieu gazeux, avec une résolution analytique. Dans le cadre de cette thèse, nous nous focaliserons davantage sur l'influence des paramètres dissipatifs en milieu liquide.

### III.2 Influence du liquide de test sur la ligne à retard nue

Les paramètres physiques du liquide sont regroupés en deux catégories : les constantes mécaniques (masse volumique, viscosité), et les constantes électriques (permittivité, conductivité). Ces paramètres agissent sur les déplacements acoustiques, ainsi que sur le potentiel électrique associé.

La piézoélectricité du substrat entraîne un couplage électroacoustique, ainsi les variables électriques influencent les déplacements acoustiques et vice versa. Nous étudierons donc dans la suite de ce chapitre l'influence de ces différents perturbateurs sur la vitesse de phase de l'onde de Love, et éventuellement sur les pertes acoustiques.

#### III.2.1 Influence des paramètres mécaniques

Comme cité ci-dessus, les paramètres mécaniques du liquide qui pourraient varier lors de l'ajout d'un soluté dans une solution solvant sont en particulier la masse volumique, et la viscosité de l'échantillon.

##### III.2.1.a Cas d'un liquide Newtonien

###### Vitesse de phase de l'onde.

La masse volumique, et la viscosité du liquide sont respectivement représentées par  $\rho_L$ , et  $\eta$  dans l'équation (II-50). La quantité  $\frac{k_L V_p \eta}{\mu_h \chi_h}$ , avec  $k_L = \sqrt{\frac{\omega \rho_L}{2\eta}}$ , peut également s'écrire :

$$\frac{V_p}{\mu_h \chi_h} \sqrt{\frac{\omega \rho_L \eta}{2}}.$$

Nous voyons que les paramètres mécaniques du liquide évoluent en racine carré par rapport à la vitesse de phase de l'onde Love. Nous proposons donc d'utiliser comme variable  $\sqrt{\eta}$ .

Remarque : la plupart des auteurs ayant travaillé sur la propagation des ondes T.H. en milieu liquide Newtonien calculent la vitesse en fonction de  $\sqrt{\eta}$ , ou  $\sqrt{\rho_L \eta}$ , ou encore  $\sqrt{\omega \rho_L \eta}$  [III-1], [III-2].

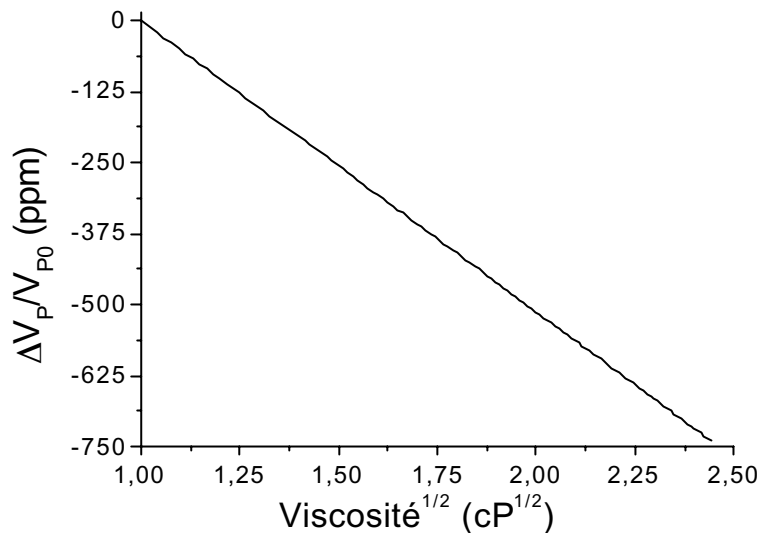


Figure III-2 : Variation de vitesse relative de l'onde de Love en fonction de la viscosité d'un liquide Newtonien (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$ ).

Nous observons, la même évolution de vitesse sur la Figure III-2, que la Figure III-1, avec la mise en évidence ici d'une variation linéaire en fonction de la racine carrée de la viscosité du liquide, pour une densité  $\rho_L$  fixe ( $10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ ).

Afin de déterminer des dispositifs sensibles ou non à la viscosité d'un liquide Newtonien, et ainsi favoriser éventuellement ou non cette sensibilité, notamment par rapport à l'effet de masse, nous exprimons pour un dispositif sa variation relative de vitesse en fonction de la racine carrée de la viscosité de l'échantillon (pente en  $\text{ppm.cP}^{-1/2}$ ).

Nous définissons ainsi la sensibilité d'une ligne à retard à la viscosité par l'expression suivante :

$$S_{\sqrt{\eta}V} = \left| \frac{V_{P\eta} - V_{P0}}{V_{P0}} \frac{1}{\Delta\sqrt{\eta}} \right|$$

où  $V_{P0}$  et  $V_{P\eta}$  sont les vitesses de phase de l'onde respectivement en présence de l'eau pure, et en milieu liquide Newtonien de viscosité  $\eta$  et de densité  $10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ . La courbe  $\Delta V_P/V_{P0}$  étant linéaire en fonction de  $\sqrt{\eta}$ , nous calculons cette sensibilité pour une viscosité  $\eta = 10 \text{ cP}$ .

Sur la Figure III-3 et la Figure III-4 sont représentés deux réseaux de courbes montrant l'influence de l'épaisseur de  $\text{SiO}_2$  et de la coupe du quartz sur cette sensibilité. Plusieurs autres paramètres peuvent être étudiés, comme la nature du substrat, ou de la couche guidante.

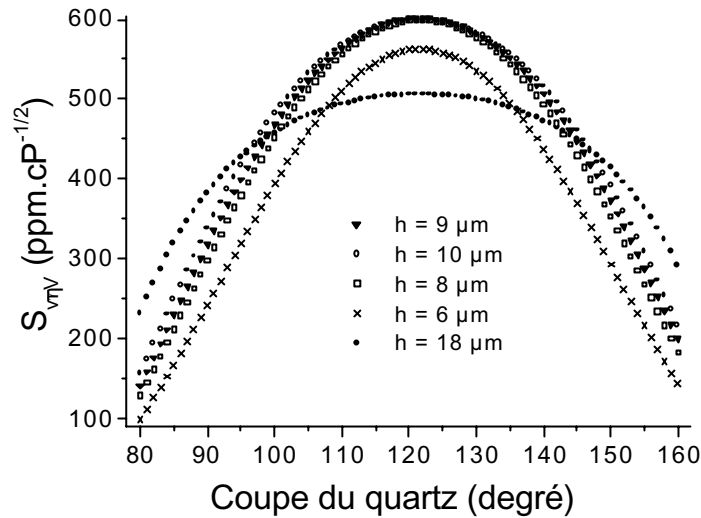


Figure III-3 : Variation de la sensibilité à la viscosité en fonction de la coupe du quartz et de l'épaisseur de  $\text{SiO}_2$  (dispositif à onde de Love, quartz /  $\text{SiO}_2$ ).

La Figure III-3 montre en particulier que le dispositif présente une sensibilité maximum pour une coupe de quartz d'angle  $\theta = 121^\circ$ . Cependant, le fait de négliger la piézoélectricité du quartz pourrait ne pas permettre de voir tous les effets de la variation de sensibilité due à la viscosité en fonction de la coupe du quartz, notamment un décalage horizontal des réponses en sensibilités en fonction des épaisseurs de couche guidante.

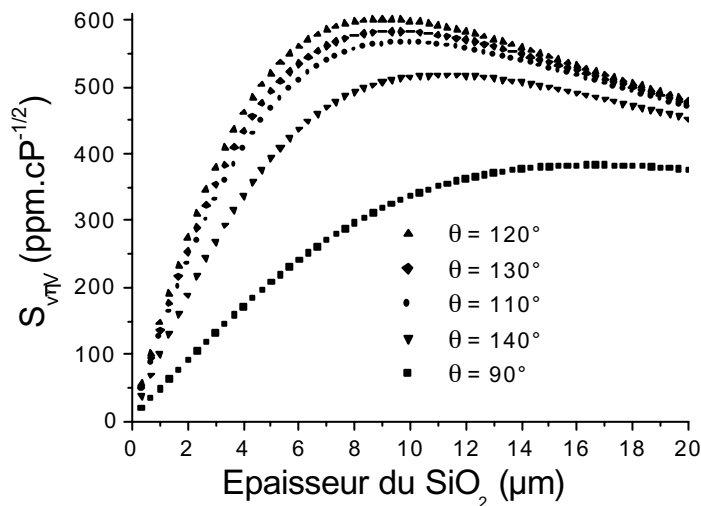


Figure III-4 : Variation de la sensibilité à la viscosité en fonction de l'épaisseur de  $\text{SiO}_2$  et de la coupe du quartz (dispositif à ondes de Love, quartz /  $\text{SiO}_2$ ).

La Figure III-4 met en évidence un maximum de sensibilité pour une épaisseur de  $\text{SiO}_2$ , égale à  $9 \mu\text{m}$  environ pour un dispositif avec  $\theta$  proche de  $120^\circ$  (et  $\lambda = 52 \mu\text{m}$ )



Nous pouvons comparer ces premiers résultats avec les travaux de Kovacs *et al* [III-10]. Ceux-ci déterminent expérimentalement la sensibilité en  $\text{m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$  des dispositifs en chargeant la surface de la ligne à retard avec un polymère de faible épaisseur (cf. chapitre I.2.2.c).

Ils utilisent deux dispositifs (quartz sur coupe ST,  $\lambda = 40 \mu\text{m}$  et  $32 \mu\text{m}$ , couche guidante de  $\text{SiO}_2$  de  $1,46 \mu\text{m}$ ) et obtiennent :  $S_{V1} = 2,4 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$ , et  $S_{V2} = 2,6 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$  (pour respectivement  $\lambda = 40 \mu\text{m}$ , et  $\lambda = 32 \mu\text{m}$ ).

En utilisant la relation (II-50), nous pouvons calculer la vitesse de phase de ces dispositifs pour différentes viscosités  $\eta$  en fonction de  $\sqrt{(\omega \rho_L \eta)/2}$ , puis en déduire  $S_{V1}$  et  $S_{V2}$ .

Les valeurs de sensibilités ainsi calculées montrent une assez bonne adéquation avec les résultats des auteurs, puisque nous obtenons :  $S_{V1} = 2,12 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$  (pour  $\lambda = 40 \mu\text{m}$ ), et  $S_{V2} = 2,66 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$  (pour  $\lambda = 32 \mu\text{m}$ ). Ces valeurs ont été calculées avec  $\mu_h = 0,25 \cdot 10^{11} \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$  (nous expliquerons ce choix dans le chapitre suivant, cf. § IV.1.1.b).

#### Pertes visqueuses.

A l'aide de la relation (II-51), nous pouvons estimer les pertes acoustiques dues à la viscosité du liquide. Ces pertes sont représentées sur la Figure III-5 également en fonction de la racine carré de la viscosité du liquide. Comme précédemment, nous avons également comme référence le dispositif à onde de Love en présence de l'eau pure.

Les pertes acoustiques associées à la présence de l'eau pure pour le dispositif à ondes de Love (en prenant comme référence la ligne à retard en milieu gazeux) sont estimées à  $0,62 \text{ cm}^{-1}$ .

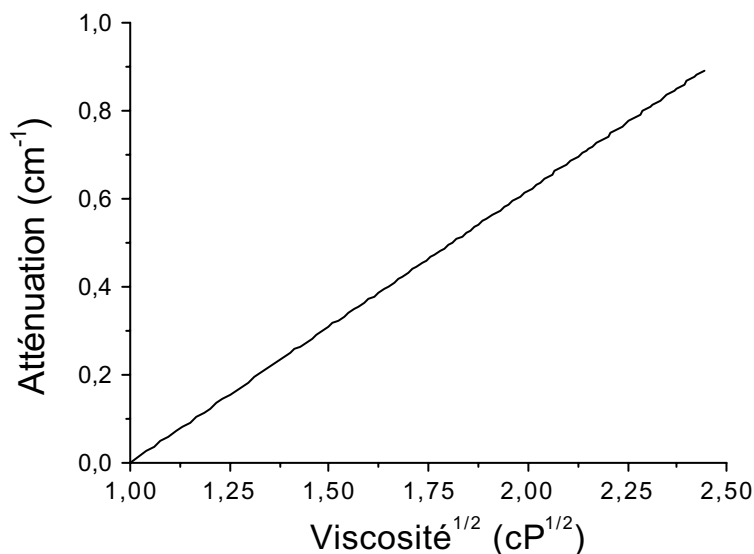


Figure III-5 : Atténuation de l'onde de Love au cours de sa propagation en fonction de la viscosité du liquide (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$ ).

L'unité la plus utilisée pour exprimer les pertes acoustiques est le décibel (dB). Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, une atténuation de  $1,4 \text{ cm}^{-1}$  se traduit par des pertes acoustiques de  $1,5 \text{ dB.mm}^{-1}$ . Ces pertes sont rajoutées aux pertes propres à la ligne à retard. Ceci montre que les dispositifs à ondes de Love dans leur configuration actuelle ne pourront fonctionner qu'avec des milieux liquides de viscosité faibles ( $< \text{quelques cP}$ ).

### III.2.1.b Cas d'un liquide Maxwellien

Le comportement mécanique d'un liquide peut être purement dissipatif (liquide Newtonien), ou viscoélastique (liquide Maxwellien, cf.§ II.1.2.b). L'équation de Navier-Stokes utilisée pour la résolution analytique ne tient pas compte des liquides viscoélastiques, nous devons alors utiliser la résolution numérique afin de tenir compte du liquide de Maxwell.

Nous avons représenté sur la Figure III-6, l'influence de la viscosité d'un liquide viscoélastique sur la vitesse de phase de l'onde de Love. Nous utilisons une valeur  $\mu_L = 3.10^7 \text{ N.m}^{-2}$ , celle-ci a été déterminée par Martin *et al.* pour des dispositifs SH-APM, en contact avec des solutions aqueuses de glycérol [III-3].

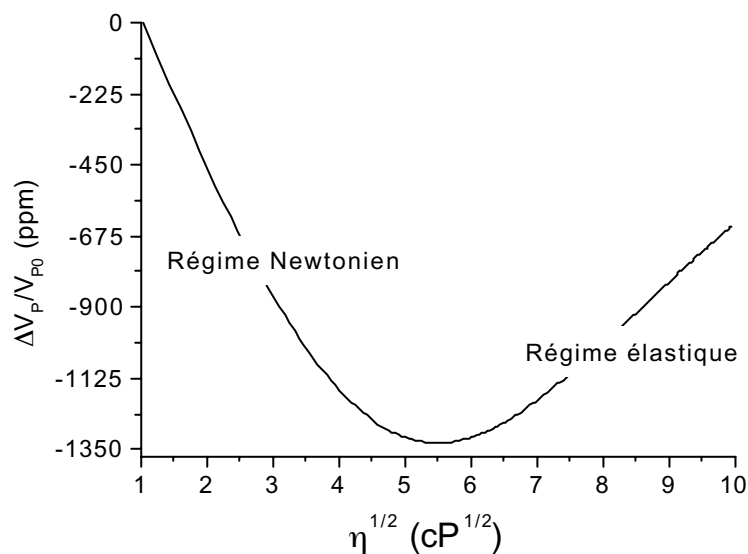


Figure III-6 : Influence de la viscosité d'un liquide Maxwellien sur la vitesse de propagation de l'onde de Love (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$ ).

Nous pouvons voir sur la Figure III-6 deux domaines de la réponse du capteur :

- l'un dit Newtonien où l'on retrouve une décroissance linéaire de la vitesse de propagation de l'onde en fonction de la racine carrée de la viscosité,

- l'autre dit élastique où, après s'être stabilisée, la vitesse de propagation de l'onde augmente de nouveau avec  $\sqrt{\eta}$ .

Afin de comprendre ce comportement, reprenons l'équation (II-17).

En appliquant la variation temporelle de l'onde en  $e^{j\omega t}$  dans l'équation (II-17), nous obtenons :

$$T_{ij} = \frac{j\omega\eta}{1 + j\omega\tau} S_{kl} \quad (\text{III-2})$$

Cette équation montre que pour des valeurs de  $\omega\tau \ll 1$ , c'est-à-dire aux basses fréquences, et/ou à faible viscosité, l'équation (III-2) s'écrit :  $T_{ij} \approx \eta \frac{\partial S_{kl}}{\partial t}$ , on retrouve un comportement

Newtonien.

En revanche aux hautes fréquences et/ou à forte viscosité, l'équation (III-2) s'écrit :  $T_{ij} \approx \mu S_{kl}$ , nous retrouvons un comportement purement élastique. Avec le dispositif de test, et des solutions aqueuses de glycérol, nous pouvons estimer le changement de domaine pour des viscosités de l'ordre de 12 cP. Cependant, lorsque la viscosité augmente, les pertes acoustiques augmentent également [III-1], ce qui réduit fortement les possibilités de fonctionnement du dispositif.

Dans le cadre de cette thèse, l'application à la détection se fera dans des solutions aqueuses dans le domaine de viscosité Newtonien pour limiter les pertes de propagation. C'est la raison pour laquelle nos modélisations seront réalisées dorénavant uniquement pour des liquides ayant un comportement mécanique Newtonien.

### *III.2.2 Influence des paramètres électriques du liquide*

Nous avons considéré pour nos premières simulations un dispositif de test ayant un substrat de quartz dans lequel les effets piézoélectriques sont négligés. Cette première hypothèse se base sur le fait que le faible coefficient de couplage électromécanique du quartz limite les perturbations électriques de notre système sur la vitesse de propagation de l'onde de Love.

En milieu gazeux, une approche purement mécanique [III-4] peut être suffisante pour modéliser le comportement des capteurs acoustiques à ondes de Love. En milieu liquide, deux grandeurs électriques peuvent varier durant une expérience de caractérisation ou de détection. Ces quantités sont la permittivité électrique du liquide  $\epsilon_L$ , ainsi que sa conductivité électrique  $\sigma$ .

De plus en milieu liquide en particulier, ces grandeurs peuvent avoir des valeurs élevées qui influencent la « ligne de base » du capteur.

Ces deux grandeurs électriques interviennent dans l'équation de propagation de l'onde électrique dans le liquide, soit l'équation (II-28).

Pour considérer la piézoélectricité du substrat dans le modèle, nous devons passer par une résolution numérique. Cela nous permettra alors d'étudier l'influence des paramètres électriques du liquide sur la vitesse de phase de l'onde de Love.

### III.2.2.a Prise en compte de la piézoélectricité du quartz.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre II.1.2.a, nous pouvons définir le coefficient de couplage électromécanique ou électroacoustique du substrat qui quantifie le couplage entre le potentiel électrique et les déplacements mécaniques de l'onde de Love.

Plus ce coefficient sera élevé (forte piézoélectricité du substrat), plus les caractéristiques de propagation de l'onde seront dépendantes des paramètres électriques du système.

Nous avons tracé les vitesses de phase de l'onde de Love en tenant compte et en négligeant la piézoélectricité du quartz, en fonction de l'épaisseur de la couche guidante de SiO<sub>2</sub> (Figure III-7) et de la coupe du substrat de quartz de la ligne à retard, en milieu gazeux (Figure III-8).

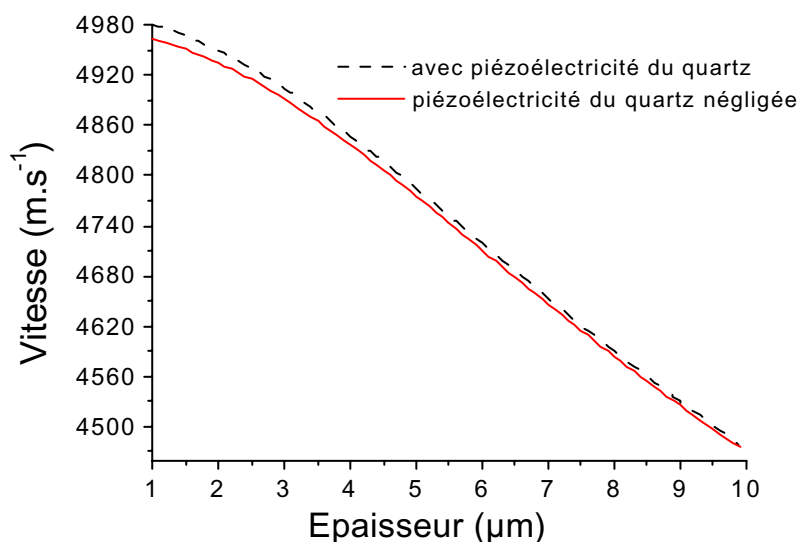


Figure III-7 : Influence de l'épaisseur de SiO<sub>2</sub> du dispositif de test sur la vitesse de propagation de l'onde de Love, avec et sans la piézoélectricité du quartz (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ; SiO<sub>2</sub>).

Ces valeurs calculées représentent des vitesses de phase pour des dispositifs non perturbés (en milieu gazeux). Ces figures montrent que pour une coupe de substrat et une épaisseur de  $\text{SiO}_2$  données, la vitesse de phase de l'onde est légèrement supérieure en tenant compte de la piézoélectricité du quartz.

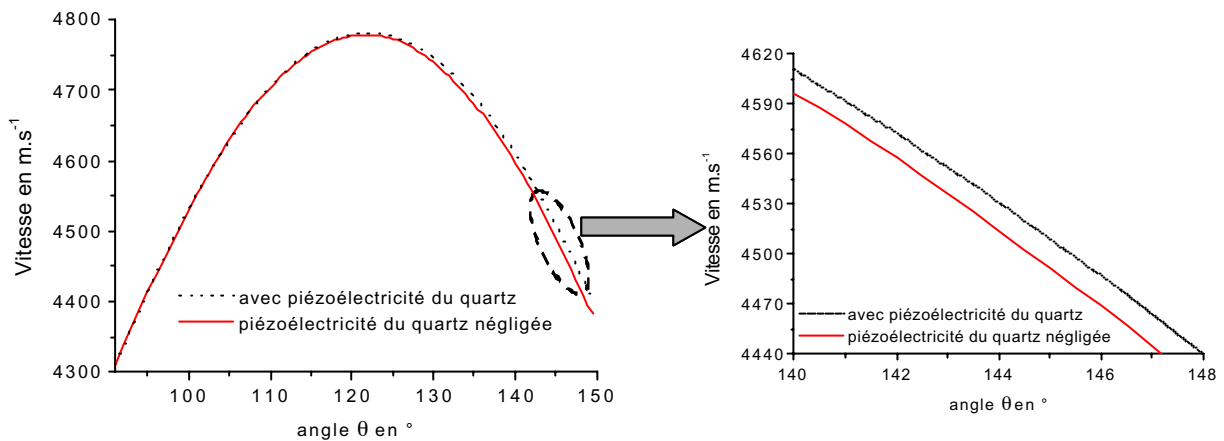


Figure III-8 : Influence de la coupe du quartz du dispositif de test sur la vitesse de propagation de l'onde de Love, avec et sans la piézoélectricité du quartz (dispositif : quartz,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$ ).

Sur la Figure III-7, nous observons un écart de  $10 \text{ m.s}^{-1}$  environ sur la vitesse de phase pour les petites épaisseurs de  $\text{SiO}_2$  (de 1 à 3  $\mu\text{m}$ ). Tandis que pour des épaisseurs supérieures à 5  $\mu\text{m}$ , il y a un écart inférieur à  $6 \text{ m.s}^{-1}$ . Ainsi l'influence de la piézoélectricité du quartz semble plus importante pour les faibles épaisseurs de  $\text{SiO}_2$ .

La Figure III-8 montre un écart de l'ordre de  $10 \text{ m.s}^{-1}$  pour des angles ( $0^\circ$ ,  $\theta < 135^\circ$ ,  $90^\circ$ ), et jusqu'à  $20 \text{ m.s}^{-1}$  pour une coupe ( $0^\circ$ ,  $150^\circ$ ,  $90^\circ$ ).

Finalement, il est aussi vérifié l'influence limitée de la faible piézoélectricité du quartz sur le dispositif de test. Cela justifie pleinement le fait de négliger ce paramètre pour mener à bien une résolution analytique afin d'estimer la vitesse de phase de l'onde de Love en première approximation.

Dans le paragraphe suivant, nous proposons d'estimer l'influence des paramètres électriques du liquide sur la vitesse de propagation de l'onde de Love.

III.2.2.b Influence de la conductivité et de la permittivité électrique du liquide

Les deux grandeurs électriques d'un liquide sont sa permittivité,  $\epsilon_L$ , et sa conductivité,  $\sigma$ . En considérant des caractéristiques mécaniques proches de celles de l'eau et invariables,  $\rho_L = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ , et  $\eta = 1 \text{ cP}$ , nous pouvons estimer l'influence des paramètres électriques d'un échantillon liquide sur la propagation de l'onde. Tout d'abord, un liquide non conducteur est caractérisé par sa permittivité électrique, exprimée par rapport à la permittivité électrique du vide  $\epsilon_0$ . Ainsi, la permittivité de l'eau pure est de  $80\epsilon_0$ , et celle de l'éthanol est de  $20\epsilon_0$ .

$\epsilon_L / \epsilon_0$	80	60	40	20
Vitesse en $\text{m.s}^{-1}$	4718,86	4718,88	4718,94	4719,07
$\Delta V / V_0$ en ppm	0	4,2	17	44,5

$$V_0 = V(\epsilon_L = 80 \epsilon_0).$$

Tableau III-2 : Vitesse de phase de l'onde de Love en fonction de la permittivité électrique d'un liquide Newtonien non conducteur (dispositif de test).

Nous pouvons voir sur Tableau III-2 que la vitesse de phase de l'onde de Love augmente en valeur relative de 45 ppm environ pour une décroissance de  $60\epsilon_0$  à partir de la valeur de la permittivité électrique de l'eau.

Nous pouvons également visualiser sur un réseau de courbes (cf. Figure III-9), la vitesse de phase de l'onde de Love en fonction de la permittivité électrique  $\epsilon_L$  et de la conductivité électrique  $\sigma$  de l'échantillon liquide.

Cette figure permet d'estimer aisément la chute de vitesse relative due à la conductivité électrique pour des liquides très conducteurs de permittivités électriques différentes.

On peut noter en particulier une valeur de conductivité électrique à partir de laquelle la sensibilité du dispositif se stabilise à une valeur maximum ( $\sigma \approx 1,5 \Omega^{-1}.\text{m}^{-1}$  dans le cas de l'eau pure). Ce comportement peut être déterminé en calculant la conductivité électrique critique du système (cf. Annexe D), la stabilisation apparaît alors pour  $\sigma \geq 2 \sigma_c$ .

Remarque :

Nous avons utilisé pour ces calculs l'équation (II-20) ceci implique que le modèle devient rigoureux pour  $\sigma \geq 2 \sigma_c$ .

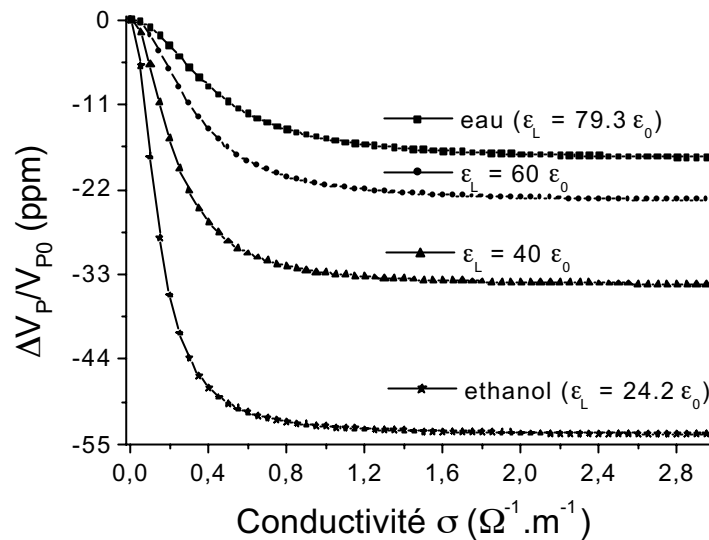


Figure III-9 : Influence de la conductivité électrique de différents liquides sur la vitesse de phase **relative** de l'onde de Love (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu m$  ;  $SiO_2$ ,  $h = 6 \mu m$  ; liquide sauf éthanol :  $\rho_L = 10^3 \text{ kg} \cdot m^{-3}$ ,  $\eta = 1 \text{ cP}$  ; éthanol :  $\rho_L = 789,3 \text{ kg} \cdot m^{-3}$ ,  $\eta = 1,2 \text{ cP}$ ).

Concernant la permittivité électrique, les détections qui nous intéressent se feront en solutions aqueuses. Ainsi, la permittivité électrique de nos échantillons sera toujours voisine de celle de l'eau.

### III.2.3 Comparaison de l'influence des paramètres mécaniques et électriques

Nous pouvons comparer l'influence des paramètres mécaniques du liquide par rapport aux paramètres électriques sur les caractéristiques de propagation de l'onde de Love. Sur la Figure III-9, nous avons un exemple de comportement typique d'une ligne à retard à ondes de Love (substrat de quartz) en fonction des paramètres électriques du liquide de test. Pour une solution aqueuse ( $\epsilon_L = 79,3\epsilon_0$ ), très conductrice ( $\sigma \approx 3 \Omega^{-1} \cdot m^{-1}$ ) la variation relative de la vitesse de phase due à la conductivité est de -18 ppm. Pour une solution à 6 cP, cette variation est quasiment identique à 0,1 ppm près. Sur la Figure III-2, nous avons un exemple typique de l'influence des paramètres mécaniques. Nous observons par exemple qu'une variation de viscosité d'un échantillon aqueux de  $1 \text{ cP}^{1/2}$  seulement provoque une diminution relative de vitesse de l'ordre de 500 ppm.

Ces valeurs montrent que la variation de la vitesse de phase de l'onde due aux paramètres électriques reste très faible devant l'influence des paramètres mécaniques. Ces résultats s'expliquent par le faible coefficient de couplage électroacoustique du quartz.

Si nous souhaitons réaliser des dispositifs très sensibles aux paramètres électriques, il faudra utiliser comme substrat piézoélectrique un matériau ayant un couplage électromécanique plus grand comme par exemple le  $\text{LiTaO}_3$  [III-7].

Dans le cas d'application de dispositifs à la réalisation d'un capteur biochimique pour lequel on souhaitera dans un premier temps privilégier la sensibilité à l'effet de masse, la faible sensibilité de la structure aux paramètres électriques du milieu de test constituera un avantage.

### *III.3 Influence des paramètres du capteur en mode détection de polluants*

L'utilisation d'une ligne à retard à onde de Love afin de réaliser un détecteur (bio)chimique, nécessite une couche mince supplémentaire sensible et sélective à l'espèce que l'on souhaite détecter.

Le fait de rajouter cette couche implique que nous n'avons plus une interface  $\text{SiO}_2$  / liquide, mais deux interfaces  $\text{SiO}_2$  / couche sensible, et couche sensible / liquide. Les caractéristiques de propagation de l'onde de Love, ainsi que les pertes visqueuses associées sont modifiées.

Nous avons considéré dans un premier temps une couche sensible constituée d'un polymère utilisé pour des applications de détection en milieu gazeux, et pour lequel un certain nombre de paramètres et de résultats sont déjà connus [III-4], par ailleurs cette démarche a permis de valider les premiers résultats théoriques dans ce cas particulier. Nous avons ensuite évalué à partir de cette couche de référence, les influences respectives d'un certain nombre de paramètres du dispositif et du milieu de test et pu les comparer entre elles. De plus, les résultats ainsi mis en évidence se sont révélés intéressants pour compléter les études en milieu gazeux. En effet l'approche théorique mise en œuvre permet de simuler l'influence de paramètres divers, et ainsi de considérer des mécanismes d'interaction autres qu'un effet de masse pur au moment de la détection, ou de connaître l'influence de la valeur de ces paramètres sur l'effet de masse.

C'est ainsi que nous intégrons dans le modèle une couche sensible de PMMA (polyméthylmétacrylate), d'épaisseur 100 nm. Nous allons considérer un comportement purement élastique de cette couche en première approximation ( $T_{ij} = \mu_b S_{kl}$ ), avec les propriétés physiques suivantes : module de rigidité transverse  $\mu_b = 1,1 \cdot 10^9 \text{ N.m}^{-2}$ , masse volumique  $\rho_b = 1109 \text{ kg.m}^{-3}$ .

Pour la suite des calculs, toujours en première approximation, nous négligeons la piézoélectricité du quartz.



### III.3.1 Influence de la présence de la couche sensible en milieu liquide

Dans un premier temps, nous souhaitons estimer l'influence de la présence de la couche sensible sur la vitesse de propagation de l'onde.

Nous voyons sur la Figure III-10 que la vitesse de phase de l'onde évolue en fonction de la viscosité du liquide de façon sensiblement identique avec et sans couche sensible. Cette réponse peut s'expliquer par la faible épaisseur de la couche de polymère ( $b = 100$  nm) devant la couche guidante de  $\text{SiO}_2$ , (environ 1,7% d'augmentation d'épaisseur), et devant la périodicité spatiale des électrodes ( $\lambda = 52\mu\text{m}$ ).

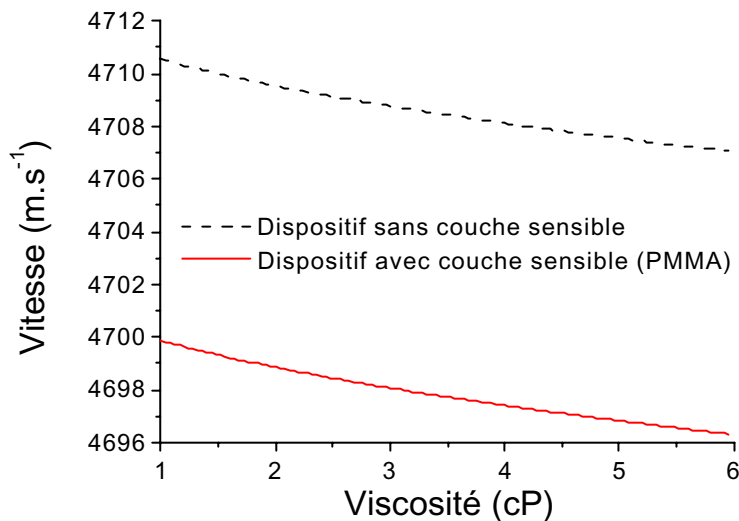


Figure III-10 : Vitesse de phase de l'onde de Love pour une ligne à retard avec et sans couche sensible en fonction de la viscosité d'un liquide Newtonien (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$ ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$ ; PMMA,  $b = 100$  nm).

Cependant il y a un décalage entre les deux courbes, lié à la charge apportée par la couche de polymère. Ce décalage a été étudié théoriquement et expérimentalement dans le cas de détection en milieu gazeux dans la thèse de Céline Zimmermann [III-4].

En utilisant la relation II-50, nous pouvons estimer les pertes acoustiques introduites par le liquide sur la ligne à retard avec couche sensible.

Ainsi la Figure III-11, montre que les pertes associées au dispositif avec ou sans couche sensible sont quasiment identiques.

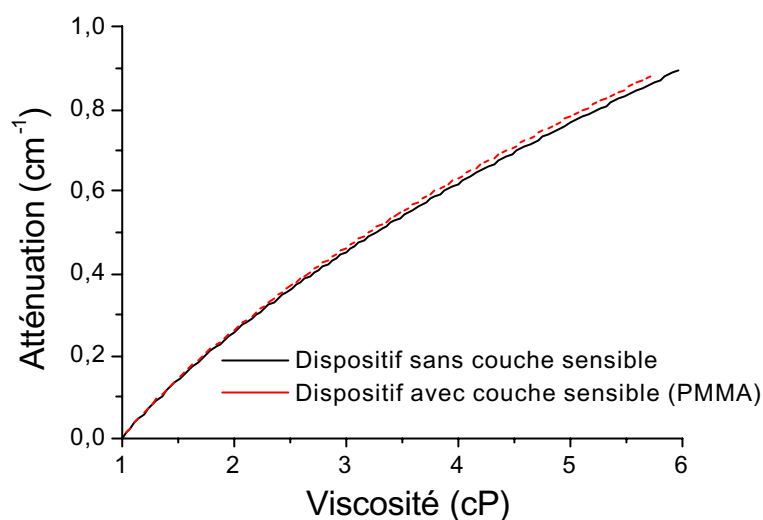


Figure III-11 : Variation de l'atténuation de l'onde de Love en fonction de la viscosité d'un liquide Newtonien (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$  ; PMMA,  $b = 100 \text{nm}$ ).

Ceci montre que, en dépit d'une couche ayant une densité et un module de rigidité transverse moins importants que le  $\text{SiO}_2$ , le rayonnement de l'énergie de l'onde dans le liquide varie très peu. Cet effet peut s'expliquer comme précédemment par la très faible épaisseur de la couche sensible (100 nm) devant l'épaisseur de la couche guidante. La densité d'énergie de l'onde est confinée dans un guide d'onde sensiblement identique.

Dans le cadre d'applications à la détection, le paramètre qui nous permet d'estimer les performances du capteur est sa sensibilité gravimétrique, ou sensibilité à l'effet de masse (cf. § I-2.3a). Dans le paragraphe suivant, nous nous proposons d'étudier la sensibilité du capteur en milieu liquide pour différentes configurations du capteur.

### III.3.2 Sensibilité gravimétrique<sup>1</sup>

#### III.3.2.a Expression de la sensibilité gravimétrique

Dans le milieu liquide de référence, l'onde de Love se propage à une certaine vitesse que nous appelons vitesse de phase non perturbée. Lors de l'introduction du composé chimique à

<sup>1</sup> N.B. S'agissant de la sensibilité à l'effet de masse, on devrait plutôt utiliser l'expression « sensibilité inertielle ». Nous continuerons cependant à l'appeler « sensibilité gravimétrique », expression universellement adoptée.

détecter, nous attendons des interactions physico-chimiques fortes entre ce polluant et la couche sensible.

Cette sorption ou cette immobilisation de molécules se traduit notamment par une augmentation de la masse de la couche sensible au moins en surface. Par analogie avec les études précédentes en milieu gazeux, cet « effet de masse » sera modélisé par une augmentation de la masse volumique du dépôt sensible.

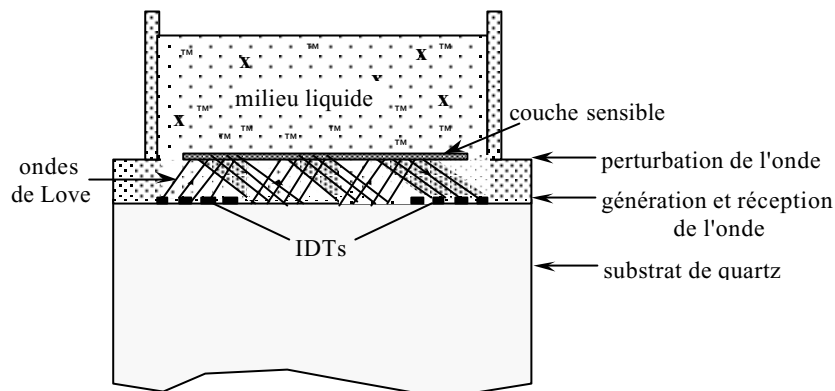


Figure III-12 : Détecteur acoustique à onde de Love en milieu liquide.

Nous utiliserons ainsi l'expression suivante pour définir la sensibilité à l'effet de masse d'une structure :

$$S_{mv} = \frac{\Delta V_P}{V_{P0}} \frac{A}{\Delta m} = \frac{\Delta V_P}{V_{P0}} \frac{1}{\Delta \rho_b b} \quad (\text{III-3})$$

où  $V_P = V_P - V_{P0}$ .

Avec :

$V_{P0}$  : vitesse de phase de l'onde avec une couche sensible de densité  $\rho = \rho_b$  ( $m \cdot s^{-1}$ ).

$V_P$  : vitesse de phase de l'onde avec une couche sensible de masse surfacique augmentée de  $\Delta m/A$ , ou d'une densité  $\rho = \rho_b + \Delta \rho_b$  ( $m \cdot s^{-1}$ ).

$\Delta m$  : accumulation de masse durant la sorption (kg).

$A$  : surface active ( $m^2$ ).

$b$  : épaisseur de la couche sensible (m).

La sensibilité gravimétrique est exprimée en  $m^2 \cdot kg^{-1}$ .

Nous disposons dès lors de tous les éléments nous permettant d'estimer la sensibilité gravimétrique des capteurs à onde de Love, en fonction des paramètres de la structure et du

milieu de test. Nous considérons ici uniquement les paramètres mécaniques, les paramètres électriques ayant une influence faible dans notre cas (cf. § II - 4.1b).

### III.3.2.b Influence des paramètres de la ligne à retard

Dans un premier temps, nous nous proposons de regarder l'influence de la longueur d'onde, et de l'épaisseur de SiO<sub>2</sub> de notre ligne à retard, avec un substrat de quartz de coupe ST en présence d'un liquide Newtonien de viscosité  $\eta = 3$  cP, et de masse volumique  $\rho_L = 10^3$  kg.m<sup>-3</sup>. Ainsi, sur la Figure III-13, nous pouvons voir que la sensibilité gravimétrique est d'autant plus grande que la longueur d'onde est petite. De plus, cette sensibilité est maximale pour une épaisseur de SiO<sub>2</sub> appropriée, telle que  $h/\lambda \approx 0,17$  ici. Cette particularité des dispositifs à ondes de Love a été également démontrée pour des applications en milieu gazeux [III-4].

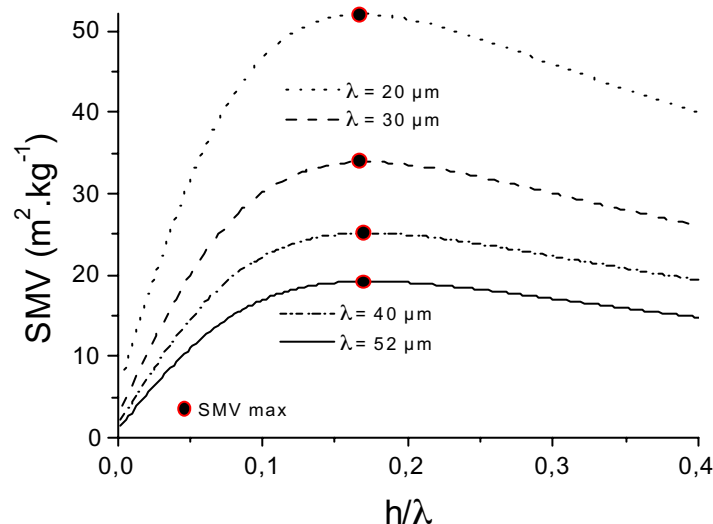


Figure III-13 : Influence de l'épaisseur du SiO<sub>2</sub> et de la longueur d'onde sur la sensibilité gravimétrique (dispositif : quartz / SiO<sub>2</sub> ; PMMA, b = 100 nm), en présence d'un milieu liquide ( $\eta = 3$  cP,  $\rho_L = 1000$  kg.m<sup>-3</sup>).

### III.3.2.c Influence de la viscosité du liquide.

Pour estimer l'influence de la variation de la viscosité du liquide sur la sensibilité gravimétrique, nous avons tracé la sensibilité gravimétrique du dispositif de test pour trois liquides de viscosités différentes :  $\rho_L = 10^3$  kg.m<sup>-3</sup>,  $\eta = 1$  cP,  $\eta = 3$  cP, et  $\eta = 7$  cP).

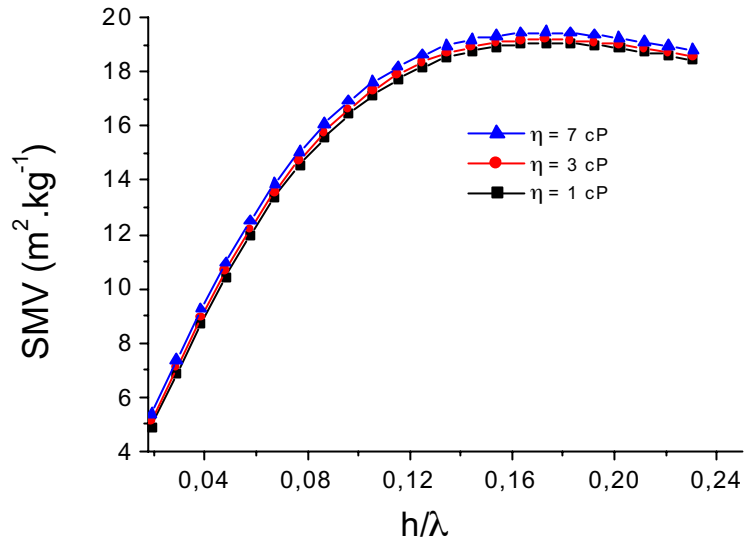


Figure III-14 : Influence du facteur  $h/\lambda$  sur la sensibilité gravimétrique (dispositif : quartz /  $SiO_2$  ; PMMA,  $b = 100$ nm), en présence de trois liquides de viscosités différentes ( $\rho_L = 10^3$   $kg \cdot m^{-3}$ ).

Nous pouvons voir sur la Figure III-14, que dans le régime Newtonien, la valeur  $h/\lambda = 0,17$  reste la grandeur optimale pour une sensibilité à l'effet de masse maximale quelle que soit la viscosité du liquide. Nous pouvons également constater que la sensibilité gravimétrique est meilleure pour des liquides Newtonien plus visqueux. Cette propriété est confirmée et quantifiée par la Figure III-15 pour notre dispositif de test.

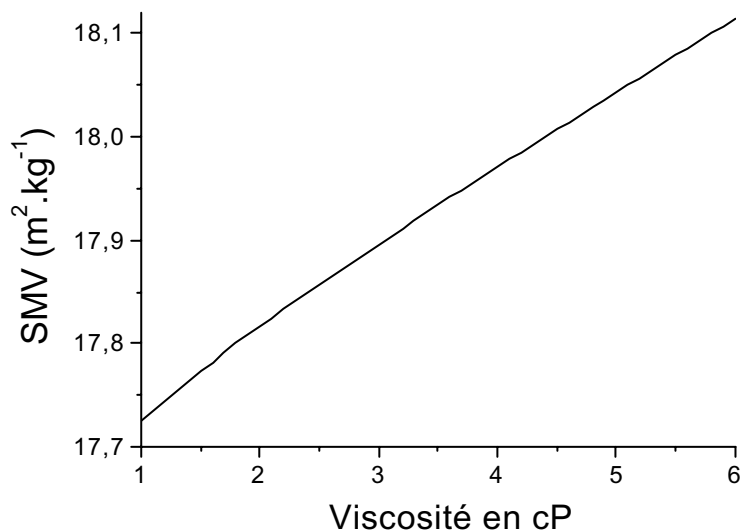


Figure III-15 : Influence de la viscosité d'un liquide Newtonien sur la sensibilité gravimétrique des capteurs à ondes de Love (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52$   $\mu m$  ;  $SiO_2$ ,  $h = 6$   $\mu m$  ; PMMA,  $b = 100$ nm).

Ainsi, la Figure III-15 montre que les capteurs seraient plus sensibles à l'effet de masse à fortes viscosités. Cependant, nous devons de nouveau corréler cette propriété avec le fait qu'augmenter la viscosité du liquide augmente aussi les pertes visqueuses. Le gain de 2% environ sur la valeur de la sensibilité gravimétrique semble faible devant l'augmentation des pertes visqueuses  $\gamma = 1,5 \text{ cm}^{-1}$  à 6 cP (cf. Figure III-11). Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, de telles pertes diminuent fortement les performances du capteur.

### III.3.2.d Influence des paramètres d'une couche sensible idéale

Il est également intéressant d'évaluer l'influence des paramètres physiques des couches sensibles sur la sensibilité gravimétrique afin de rechercher une structure présentant les meilleures caractéristiques possibles pour le capteur : bonne sensibilité à l'effet de masse, éventuellement en minimisant la sensibilité à d'autres paramètres (viscosité du liquide par exemple). Ainsi, nous avons calculé et représenté sur la Figure III-16 et la Figure III-17 l'influence de l'épaisseur de la couche sensible sur la sensibilité gravimétrique en fonction de sa masse volumique  $\rho_b$  et de son module de rigidité élastique transverse  $\mu_b$ , pour une détection dans un milieu liquide Newtonien de viscosité 3 cP et de densité  $10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ .

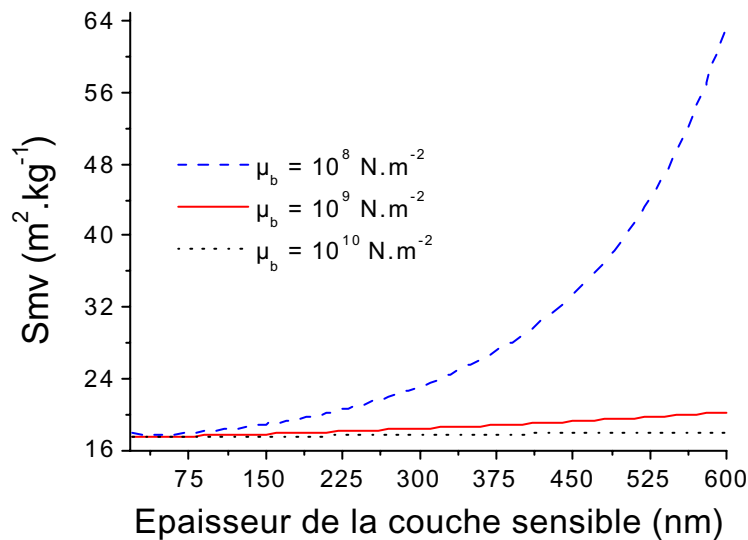


Figure III-16 : Influence de l'épaisseur de la couche sensible en fonction de différents modules de rigidité transverse sur la sensibilité gravimétrique (dispositif : quartz coupe ST,

$$\lambda = 52 \text{ } \mu\text{m} ; \text{SiO}_2, h = 6 \text{ } \mu\text{m} ; \rho_b = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}.$$

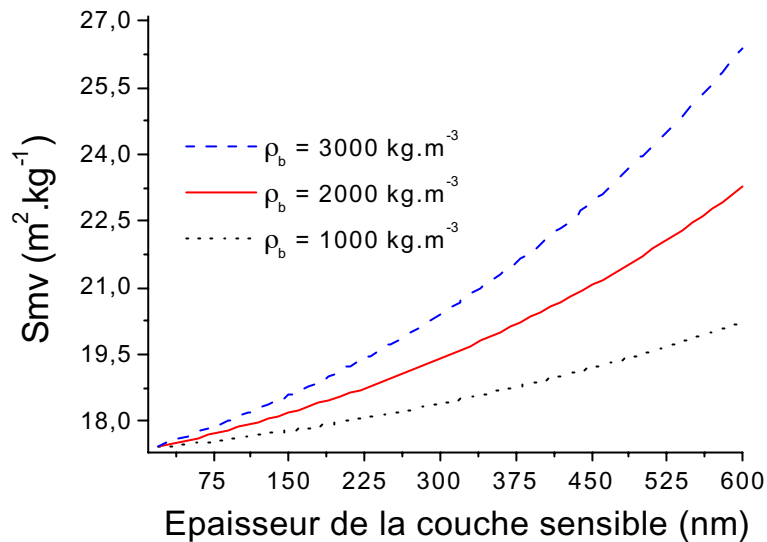


Figure III-17 : Influence de l'épaisseur de la couche sensible en fonction de différentes masses volumiques sur la sensibilité gravimétrique (dispositif : quartz coupe ST,  $\lambda = 52 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 6 \mu\text{m}$  ;  $\mu_b = 10^9 \text{ N.m}^{-2}$ ).

Nous pouvons constater que, la sensibilité à l'effet de masse est plus grande avec une couche sensible présentant un faible module de rigidité transverse (Figure III-16), et une forte masse volumique (Figure III-17). Des résultats similaires ont été obtenus dans le cas des détections en milieu gazeux [III-4].

### III.3.2.e Influence des paramètres d'une couche sensible viscoélastique

Dans le cadre de la thèse de Céline Zimmermann, qui concerne les premières études des dispositifs à ondes de Love, une application pour la détection de composés organophosphorés a été étudiée.

Pour cela une couche sensible de polysiloxane ( $\rho_b = 1430 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $b \approx 6 \text{ nm}$ ,  $\mu_b = 10^4 \text{ N.m}^{-2}$ ) a été déposée sur la surface de la ligne à retard (substrat de quartz sur coupe AT,  $\lambda = 40 \mu\text{m}$ , couche guidante de  $\text{SiO}_2$  de  $4,6 \mu\text{m}$  d'épaisseur) [III-8].

Pour simuler la réponse du capteur, une résolution analytique utilisant un modèle trois couches a été mise en œuvre. Cette résolution utilise comme couche sensible un modèle correspondant à un matériau purement élastique. Les corrélations entre expérience et théorie ont montré une bonne adéquation pour les faibles concentrations de vapeurs. Cependant, le

modèle purement élastique du polymère, ainsi qu'un effet de masse pur, ne suffisent pas à expliquer la réponse du capteur pour les plus fortes concentrations de gaz.

Certains chercheurs ont émis l'hypothèse de la modification des propriétés viscoélastiques des polymères (et particulièrement de leur viscosité) lors de détections [III-9].

Afin d'étudier l'influence de la modification des propriétés viscoélastiques des polymères sur la vitesse de propagation des ondes de Love, nous devons comprendre les paramètres physiques mis en jeu, et disposer d'un modèle susceptible d'en rendre compte. Ainsi, le comportement mécanique considéré pour un polymère est celui d'un solide de Voight (cf. § II.1.2.a).

Sur la Figure III-18, nous avons représenté l'évolution de la vitesse de phase du capteur en fonction de la viscosité du polymère. Cette propriété permet dans certains cas de proposer une explication sur la réponse du capteur pour les fortes concentrations de gaz [III-8].

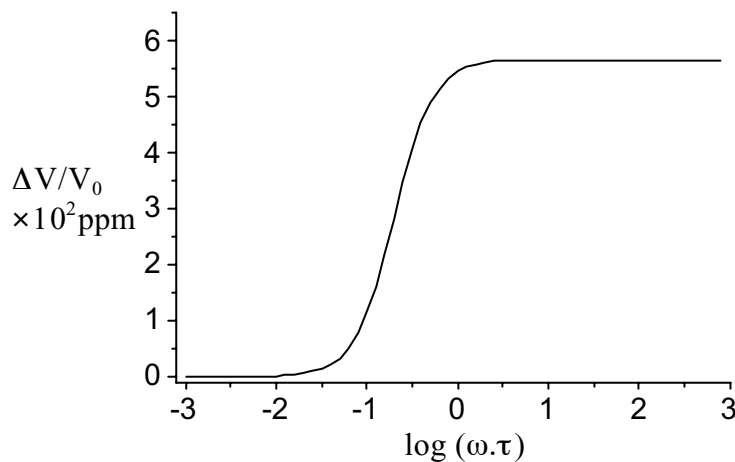


Figure III-18: Variation de vitesse relative due à la viscosité du polymère

Ligne à retard à ondes de Love, (dispositif : quartz coupe AT,  $\lambda = 40 \mu\text{m}$  ;  $\text{SiO}_2$ ,  $h = 4,6 \mu\text{m}$  ; couche sensible isotrope,  $\rho_b = 1430 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $b \approx 6 \text{ nm}$ ,  $\mu_b = 10^4 \text{ N.m}^{-2}$ ).

### III.4 Conclusion

Cette étude théorique nous permet dans un premier temps de prévoir le comportement des lignes à retard à onde de Love dans leur configuration basique et en mode capteur (avec une couche sensible).



En configuration basique, nous pouvons déterminer l'influence des paramètres physiques de la ligne à retard et du liquide de test sur les paramètres de propagation de l'onde.

Avec certaines hypothèses simplificatrices, notamment en considérant un liquide newtonien, la résolution analytique permet d'estimer l'influence des paramètres mécaniques de la structure sur le comportement du dispositif.

Les calculs utilisant les équations analytiques montrent une parfaite adéquation avec la résolution numérique de la cas de l'étude de l'influence de la viscosité newtonienne d'un liquide sur la vitesse de phase de l'onde de Love.

Afin de pouvoir étudier l'influence des paramètres électriques sur les caractéristiques de propagations de l'onde de Love, nous devons tenir compte de la piézoélectricité du substrat de quartz et mettre en œuvre la résolution numérique. Ainsi, la prépondérance de l'influence des paramètres mécaniques du système sur les caractéristiques de propagation de l'onde de Love par rapport aux paramètres électriques a été démontrée.

En configuration capteur, il est possible d'estimer la sensibilité gravimétrique des lignes à retard à ondes de Love en présence de liquide, et d'optimiser leurs performances.

Pour cela, il est d'abord possible d'optimiser les caractéristiques de la ligne à retard à ondes de Love. En réduisant la longueur d'onde, et en utilisant une épaisseur de  $\text{SiO}_2$  appropriée ( $h/\lambda = 0,17$ ) nous avons montré qu'il est possible d'augmenter la sensibilité gravimétrique d'un facteur 3 pour  $\lambda$  variant de  $52 \mu\text{m}$  à  $20 \mu\text{m}$ .

Ensuite le choix d'une couche sensible ayant un module de rigidité transverse faible et une masse volumique élevée permet également d'améliorer la sensibilité à l'effet de masse du capteur.

Enfin, nous avons montré que les liquides newtoniens de forte viscosité favorisent la sensibilité gravimétrique des capteurs ; cependant, un compromis doit être trouvé entre cette dernière propriété et le fait qu'augmenter la viscosité du liquide de test augmente également les pertes acoustiques.

Dans les deux chapitres suivants, nous proposons de valider expérimentalement ces résultats théoriques, avec cependant des contraintes qui limiteront la comparaison entre théorie et expérience.

En effet les différents comportements physiques mis en jeu réagissent simultanément lors des expériences, et leur dissociation expérimentale sera très délicate. De plus, les différentes valeurs des paramètres du système sont publiées dans la littérature pour des matériaux volumiques. Il est probable que ces valeurs soient sensiblement différentes pour des matériaux

en couches minces, et pour des fréquences d'oscillation de l'onde de l'ordre de 100 MHz ( $\lambda = 52 \mu\text{m}$ ,  $V_p = 4500 \text{ m.s}^{-1}$ ).

Enfin, la modélisation de la couche sensible et des interactions avec le milieu extérieur a été effectuée de façon analogue à ce que nous connaissons pour la détection de composés en milieu gazeux, en l'absence de modèle pour une couche biologique.

**CHAPITRE IV**  
**MISE EN ŒUVRE ET CARACTERISATION DES**  
**SYSTEMES A ONDES DE LOVE EN MILIEU LIQUIDE**



L'objectif final des travaux exposés dans cette thèse est de réaliser des expériences de détection de biomolécules en milieu liquide.

Dans cette optique, après les travaux théoriques effectués dans les chapitres II et III pour concevoir des dispositifs adaptés, nous présentons dans ce chapitre les lignes à retard à ondes de Love réalisées et leur mise en œuvre.

Ensuite, sont décrits la cellule et le banc de test spécifiques aux milieux liquides qui ont été conçus et réalisés. En effet, une contrainte supplémentaire par rapport aux milieux gazeux apparaît : le milieu de test doit être parfaitement isolé des connexions électriques.

Enfin, avant d'étudier les expériences de détection (dont les résultats sont exposés dans le chapitre V), nous proposons de caractériser les lignes à retard à ondes de Love nues en milieu liquide. Nous pourrions alors conclure et valider le modèle et les résolutions théoriques précédemment établies. Cela permettra aussi une meilleure analyse des résultats de détection.

#### ***IV.1 Dispositifs à ondes de Love et banc de test***

Bien qu'ayant bénéficié de l'évolution des techniques de réalisation des lignes à retard à ondes de surface pour des applications de filtrage en télécommunication, la fabrication des dispositifs acoustiques en général, et en particulier la réalisation des lignes à retard à ondes de Love nécessitent la mise en œuvre de procédés de la microélectronique et des microsystèmes qui restent spécifiques avec des contraintes technologiques importantes.

La démarche de réalisation de l'équipe capteur acoustique du laboratoire IXL consiste à utiliser des dispositifs nus ayant les caractéristiques de propagation de l'onde déterminées par la conception théorique du capteur.

Ensuite, une cellule de test adaptée au milieu liquide est réalisée, ainsi qu'un banc de test.

Enfin, dans le cas d'une application en mode capteur, après avoir déterminé la couche sensible et sélective que l'on souhaite utiliser en fonction de son affinité avec le composé à détecter, celle-ci est déposée sur la surface de la ligne à retard.

Ce dépôt peut être effectué avec des moyens physiques [IV-1], ou par des procédés biochimiques comme nous le verrons dans le chapitre suivant dans le cadre de détections en milieu liquide.

IV.1.1 Le dispositif à ondes de Love et sa mise en œuvre en milieu liquide

IV.1.1.a Fabrication des dispositifs utilisés

Les propriétés physiques des lignes à retard nues sont définies principalement par :

- la coupe du quartz: afin de pouvoir par exemple minimiser la sensibilité à la température des dispositifs [IV-1],
- la périodicité spatiale des électrodes interdigitées, qui détermine directement la longueur d'onde ( $\lambda$ ),
- l'épaisseur de  $\text{SiO}_2$  : l'épaisseur du guide d'onde afin de maximiser la sensibilité à l'effet de masse du dispositif.

Chaque étape de la fabrication comporte des contraintes technologiques qui limitent la diversité des dispositifs à ondes de Love réalisables.

La première étape de fabrication consiste à réaliser les électrodes interdigitées sur le substrat (cf. Figure IV-1). Afin de rester dans le domaine des microsystèmes et des radiofréquences, tout en ayant une bonne sensibilité à l'effet de masse (en effet une trop grande longueur d'onde diminue fortement la sensibilité gravimétrique du dispositif, cf. § III.3.2.b), la périodicité spatiale des électrodes interdigitées est de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. Pour limiter en particulier le phénomène de triple écho [IV-2], des doubles doigts sont gravés pour chacune des électrodes, ce qui implique que l'espace entre doigts, ainsi que leur largeur est de  $\lambda/8$ , soit typiquement  $5 \mu\text{m}$  environ.

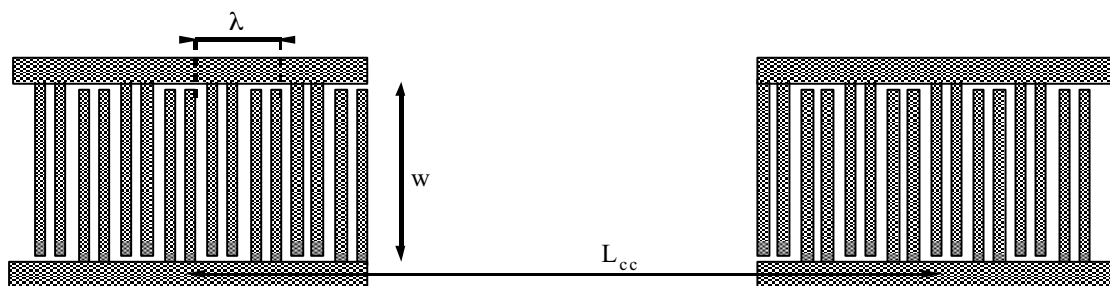


Figure IV-1 : Schéma et paramètres géométriques des électrodes (ou transducteurs) interdigitées.

- N : nombre de paires d'électrodes doubles.  
W : ouverture des électrodes.  
 $\lambda$  : périodicité des électrodes.  
 $L_{cc}$  : distance centre à centre entre les deux transducteurs.

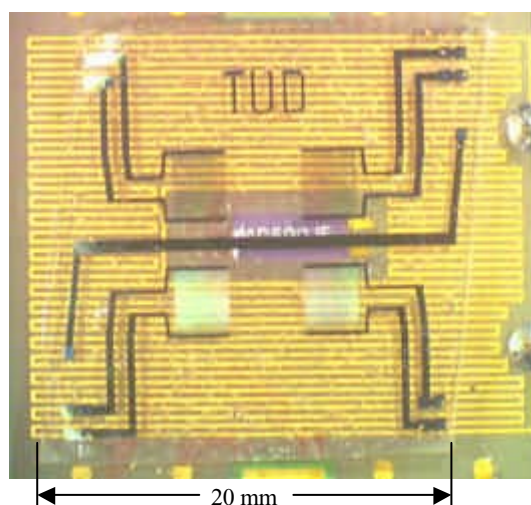
La largeur de la bande passante de la ligne à retard, est liée au nombre de doigts des transducteurs [IV-2], typiquement plusieurs dizaines.

L'ouverture  $W$  des électrodes, et la longueur du chemin acoustique  $L_{cc}$ , typiquement quelques millimètres, déterminent la surface sensible sur laquelle nous aurons des interactions entre l'onde et le milieu. Ces électrodes sont réalisées en aluminium sur le substrat de quartz par photolithographie [IV-3]. La principale difficulté technologique est liée à la gravure de cette structure nécessitant zéro défaut sur une surface de plusieurs dizaines de millimètres carrés. Certains problèmes rencontrés lors de cette réalisation sont exposés dans les thèses de Irène Esteban [IV-3] et Céline Zimmermann [IV-1].

La couche guidante de  $\text{SiO}_2$  est déposée sur toute la surface du quartz. La technique de dépôt utilisée est la P.E.C.V.D (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) qui consiste à former une couche sur un substrat par réaction chimique de composés gazeux. Le dépôt s'effectue en phase vapeur activée par plasma, ce qui permet d'effectuer des dépôts à basse température, et ainsi ne pas dépasser la température de changement de phase du quartz.

Cette technique permet d'obtenir une couche mince assez homogène, et a permis de déposer sur la ligne à retard une épaisseur de plusieurs micromètres de  $\text{SiO}_2$ , soit une épaisseur très importante par rapport à la technologie microélectronique classique, mais nécessaire pour notre application. Son principal défaut est une possible contamination des couches par des particules de plasma.

La photographie IV-1 montre un exemple typique de double ligne à retard (Université de Delft, Hollande) utilisée dans le cadre de cette thèse.



photographie IV-1 : Dispositif à onde de Love utilisé.

Les bords du substrat sont découpés en biais pour limiter les parasites dus aux réflexions de l'onde acoustique.

Chaque dispositif est collé à l'aide d'un élastomère silicone (RTV 3145 de Dow Corning) et câblé sur un circuit imprimé (PCB). Une cavité réalisée dans le PCB permet d'y loger un capteur de température AD 590.

A l'aide de connecteurs, cet ensemble constitue une double tête de mesure enfichable (cf. Figure IV-2).

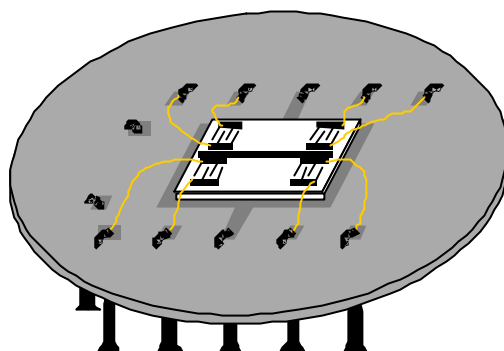


Figure IV-2 : Dispositif à ondes de Love interchangeable.

Le Tableau IV-1 reprend les principales caractéristiques du dispositif de test retenu pour cette première étude visant à démontrer les potentialités des dispositifs à ondes de Love en milieu liquide (cf. § III.1).

Substrat	Electrodes interdigitées				Couche guidante
	$\lambda$ en $\mu\text{m}$	W en mm	N	$L_{cc}$ en mm	
Quartz coupe ST angles d'Euler : (0, $\theta = 132,75^\circ$ , $90^\circ$ )	52	$50 \times \lambda = 2,6$	50	$125 \times \lambda = 6,5$	$\text{SiO}_2$ d'épaisseur h = 6 $\mu\text{m}$

Tableau IV-1 : Caractéristiques techniques du dispositif à onde de Love.

#### IV.1.1.b Caractérisation des dispositifs utilisés

Théoriquement, nous pouvons estimer la vitesse de propagation de l'onde de Love pour un dispositif nu en utilisant l'équation II-49.

Afin d'effectuer ce calcul, nous utilisons un module de rigidité transverse du  $\text{SiO}_2$  corrigé  $\mu_h = 2,5 \times 10^{12} \text{N.m}^{-2}$  [IV-1] au lieu de la valeur relevée dans la littérature



$\mu_h = 3,25 \times 10^{12} \text{ N.m}^{-2}$ , caractéristique d'un matériau volumique et en basse fréquence. Cette valeur ajustée du module de rigidité de la couche de  $\text{SiO}_2$  sera utilisée pour toutes les modélisations suivantes. Ainsi, nous trouvons une vitesse de propagation  $V_{\text{pneu}} = 4561 \text{ m.s}^{-1}$ . En utilisant la relation (IV-1), cela correspond à une fréquence  $f_{\text{pneu}} = 87,72 \text{ MHz}$ .

$$f = V_p / \lambda \quad (\text{IV-1})$$

Nous pouvons voir sur la Figure IV-3, la réponse fréquentielle en transmission (gain et phase) d'une ligne testée à l'analyseur de réseau. Cette réponse montre une fréquence centrale du dispositif nu proche de 87,9 MHz (cf. marqueur 3), voisine de la valeur théorique précédente.

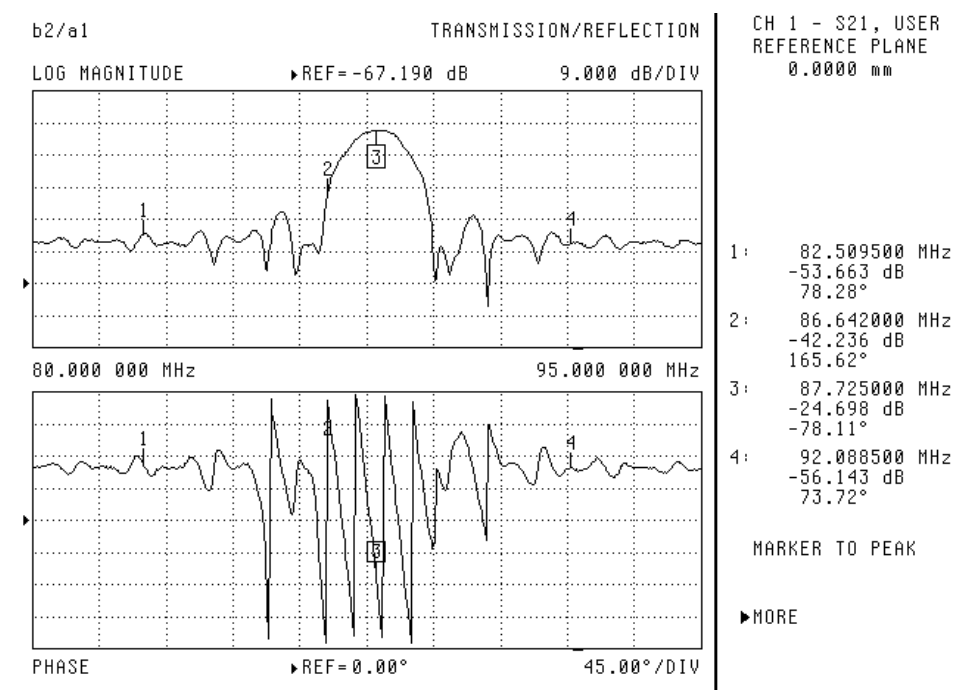


Figure IV-3 : Réponse à l'analyseur de réseau d'une ligne à retard du dispositif utilisé.

Les niveaux de pertes (proche de 25 dB) et de réjection (de l'ordre de 30 dB) et la bonne linéarité de la phase sont tout à fait compatibles avec l'utilisation habituelle du dispositif, en particulier en montage oscillateur (cf. § IV.1.2.c).

La Figure IV-4 montre la réponse temporelle en transmission du dispositif de test obtenue par transformée de Fourier inverse de la réponse fréquentielle à l'aide de l'analyseur de réseau.

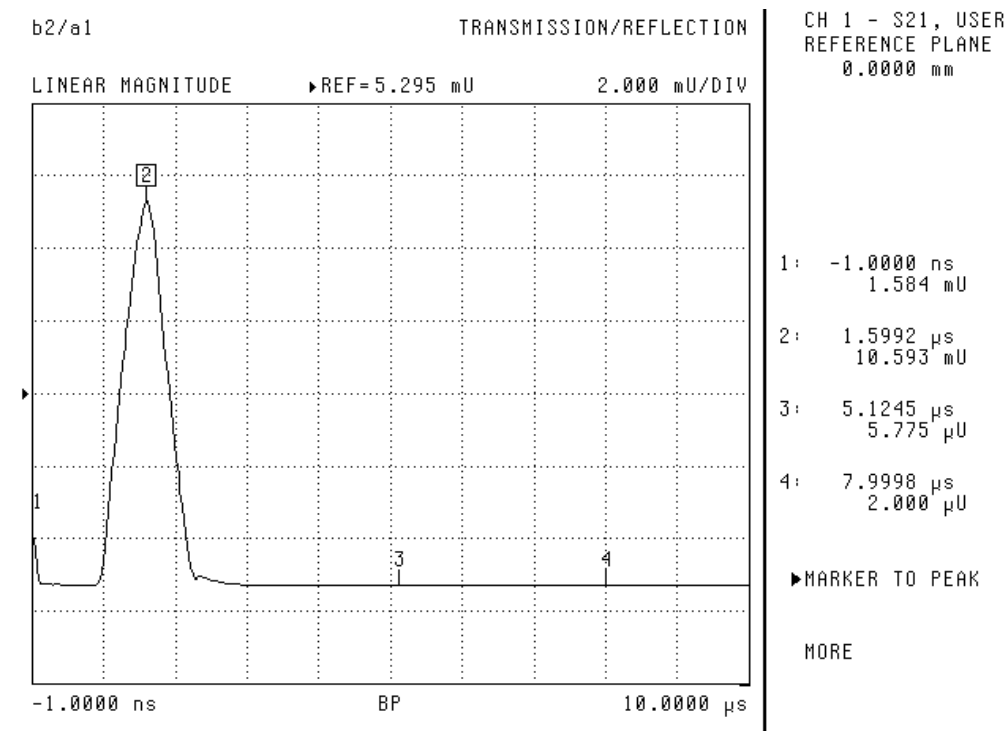


Figure IV-4 : Réponse temporelle de la propagation d’une onde Love.

Cette réponse est typique des lignes à retard à ondes acoustiques. Le premier pic (marqueur 1) représente l’onde électromagnétique qui se propage à la vitesse de la lumière ; il se situe à l’origine des temps car il n’est pratiquement pas retardé. Le second pic (marqueur 2) représente l’onde acoustique qui se propage dans la ligne à retard. Ce pic est situé à un temps  $\tau = 1,6 \mu\text{s}$ , qui correspond au temps mis par l’onde pour se propager du transducteur « d’émission » vers le transducteur de « réception ». Ce temps peut être estimé à partir de la vitesse de phase de l’onde et de la distance centre à centre  $L_{cc}$  des deux électrodes interdigitées,  $\tau = \frac{L_{cc}}{V_p} \approx \frac{6,5 \cdot 10^{-3}}{4561} = 1,43 \mu\text{s}$ . En fonctionnement normal, l’amplitude du pic acoustique est très grande devant l’amplitude du pic électromagnétique. L’absence d’autres pics sur la courbe montre l’absence de réflexions parasites de l’onde acoustique.

#### IV.1.1.c Cellule de test en milieu liquide

Pour ces premières applications en milieu liquide, une cellule de test a été conçue et réalisée pour des expériences avec des fluides en statique. Celle-ci, en plexiglas ou en téflon, vient au

contact des lignes à retard par l'intermédiaire d'un joint d'étanchéité et est maintenue par la pression de quatre vis (Figure IV-5).

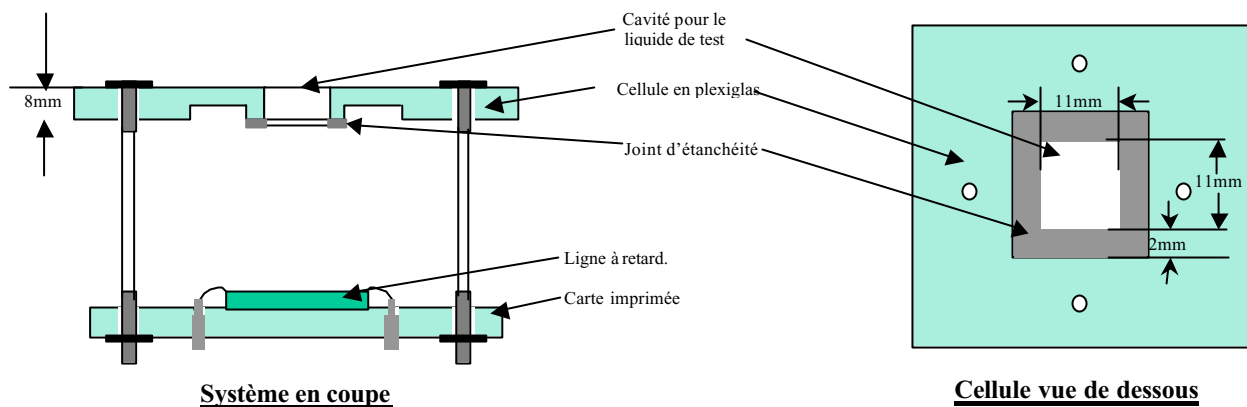


Figure IV-5 : Cellule de test du dispositif à ondes de Love.

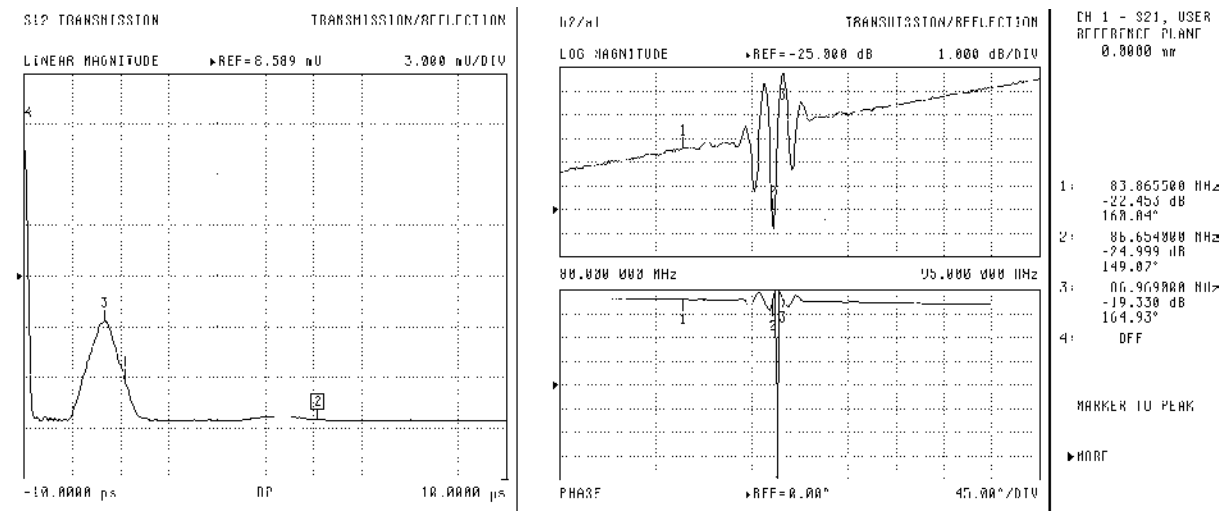
L'échantillon liquide de test est ainsi localisé sur la surface du capteur, et en particulier sur le chemin de propagation de l'onde et au-dessus des électrodes interdigitées.

Pour les tests, ce dispositif et les échantillons liquides sont placés sur un bain thermostaté à sec, et toutes les expériences sont menées dans une pièce climatisée. Ces précautions de régulation en température sont nécessaires, d'autant plus que le dispositif de test sur coupe ST est assez sensible à ce paramètre [IV-1].

#### IV.1.1.d Amélioration du montage : mode différentiel

Pour certaines expériences, nous avons utilisé un dispositif métallisé. Les caractéristiques technologiques de cette ligne à retard sont les mêmes que celles du dispositif de test (cf. Tableau IV-1). La métallisation est réalisée avec une fine couche d'aluminium de 600 nm d'épaisseur qui est reliée à la masse du signal RF. Afin de protéger la métallisation des attaques salines, une couche supplémentaire de 300 nm de  $\text{SiO}_2$  a été déposée.

La Figure IV-6 représente les réponses temporelle et fréquentielle en transmission ( $S_{21}$ ) du dispositif à ondes de Love métallisé.



a) Réponse temporelle

b) Réponse fréquentielle

Figure IV-6 : Réponse en transmission en bande étroite  $S_{21}$  d'une la ligne à retard métallisée.

Comparée à la réponse temporelle typique d'une ligne à retard dans l'air (Figure IV-4), la Figure IV-6 a) montre que l'amplitude du pic électromagnétique (marqueur 4) devient ici très grande devant l'amplitude du pic acoustique (marqueur 3). Il en résulte sur la Figure IV-6 b) une réponse en fréquence fortement dégradée : le lobe principal est très perturbé avec en particulier un creux au centre, le niveau de bruit est très élevé, et la phase n'est plus du tout linéaire.

La cause de cette dégradation est la proximité des électrodes interdigitées et du plan métallique conducteur imposée par l'épaisseur de la couche guidante (quelques micromètres).

Afin de limiter ce problème, la ligne à retard a été utilisée en mode différentiel, à l'aide de transformateurs à point milieu de gain unitaire (aussi appelés « baluns ») insérés sur chaque port (cf. Figure IV-7).

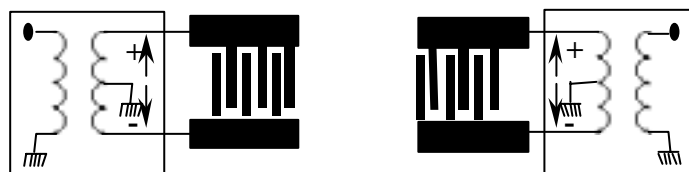
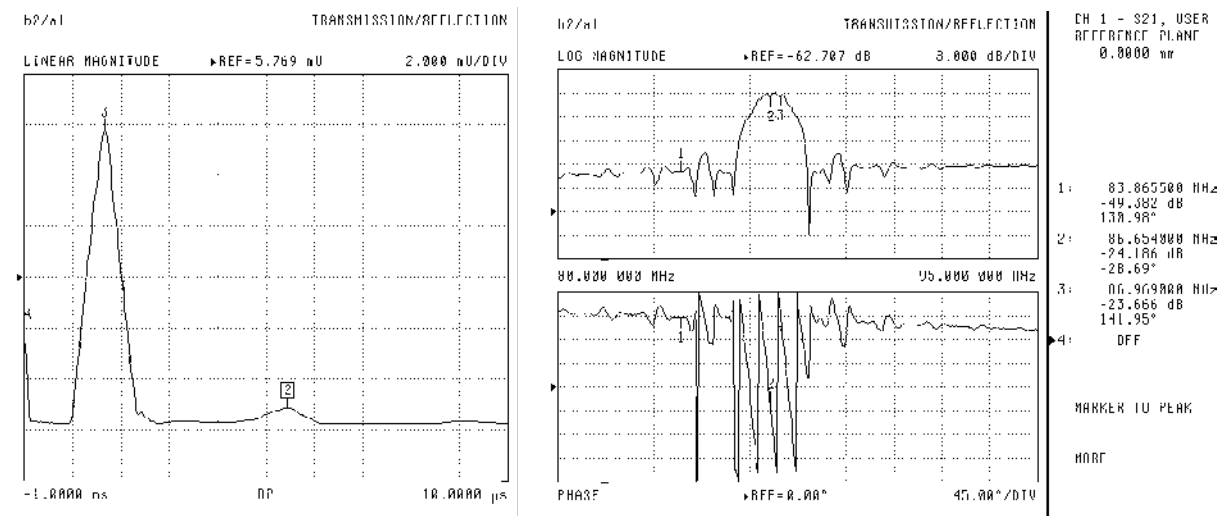


Figure IV-7 : Schéma de principe du montage de la ligne à retard en différentiel.

L'élimination du mode commun permet ainsi de retrouver des caractéristiques de la ligne à retard tout à fait compatibles avec un fonctionnement normal, notamment en oscillateur,

même en présence d'un plan métallisé en surface (cf. Figure IV-8), ou plus tard d'un milieu liquide conducteur.



a) Réponse temporelle

b) Réponse fréquentielle

Figure IV-8 : Réponse en transmission en bande étroite  $S_{21}$  d'une la ligne à retard métallisée en mode différentiel.

#### IV.1.2 Le banc de test

##### IV.1.2.a L'oscillateur

Notamment pour les tests de détection qui nécessitent une grande résolution de mesure, la ligne à retard, montée dans la cellule de test, est placée dans la boucle de rétroaction d'un amplificateur. On réalise ainsi un oscillateur, dont on prélève une faible partie du signal pour mesurer la fréquence de synchronisme  $f_0$ . C'est cette fréquence qui varie lorsque notre système est perturbé. Pour osciller à une fréquence  $f_0$ , la chaîne électronique doit satisfaire à la fois une condition sur le gain, et sur la phase (conditions de Barkhausen).

Le gain de l'amplificateur permet de compenser les pertes de la ligne à retard, ainsi que celles des autres éléments de la chaîne électronique, et de satisfaire ainsi la condition sur le gain :

$$G_{\text{ligne à retard}} + G_{\text{ampli}} + G_{\text{autres éléments}} = 0^+ \text{ dB} \quad (\text{IV-2})$$

La condition de phase s'écrit :

$$2\pi f_0 \frac{L_{cc}}{V_P} + 2\Phi_{IDT} + \Phi_{ampli} = 2n\pi \quad (IV-3)$$

Avec  $\Phi_{IDT}$  : déphasage intrinsèque des structures interdigitées.

$\Phi_{ampli}$  : déphasage de la chaîne amplificatrice.

n : entier naturel.

En pratique,  $\Phi_{IDT}$  et  $\Phi_{ampli}$  pourront être considérés comme constants pendant une expérience de caractérisation ou de détection, car seule la ligne à retard est au contact de l'environnement de test.

La Figure IV-9 montre pour une condition de phase donnée ( $2\Phi_{IDT} + \Phi_{ampli} \approx -20^\circ \text{ mod}(2\pi)$ ), trois points de fonctionnement possibles. Pour chacun, un gain de la chaîne amplificatrice ajusté pour compenser exactement les pertes correspondantes assurera une oscillation quasi-sinusoidale. En pratique, l'oscillateur sera réglé avec un gain total un peu supérieur à la limite d'oscillation en restant toutefois assez proche d'un système quasi sinusoidal. Ce léger «sur-réglage» permet d'assurer l'oscillation même en cas d'une légère augmentation des pertes de la ligne à retard qui peuvent se produire en cours de test, en particulier lorsque la viscosité du liquide augmente.

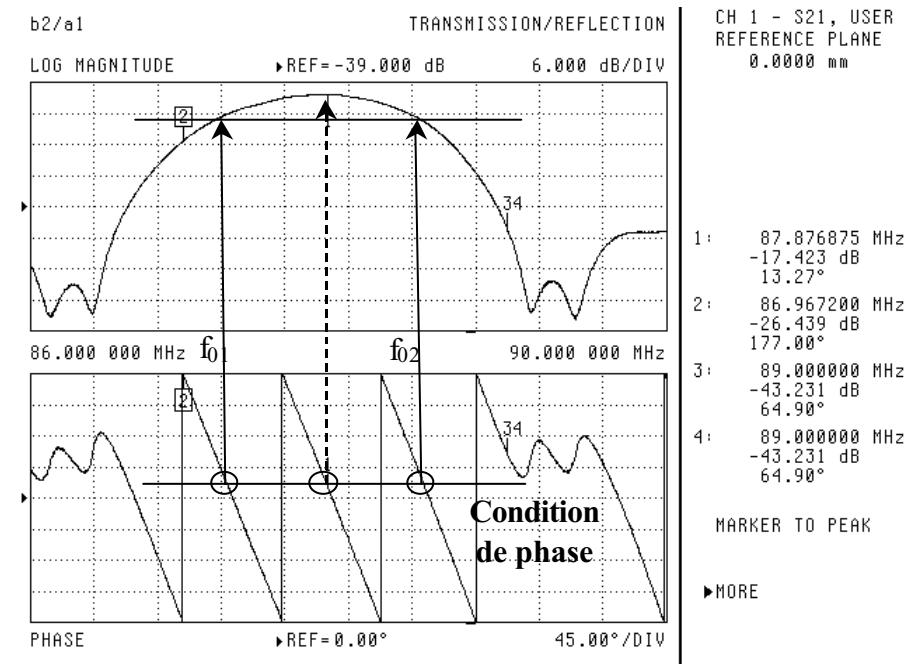


Figure IV-9 : Réponse en fréquence de la ligne à retard et ponts de fonctionnement en montage oscillateur.

Lors d'une expérience de détection, la variation de vitesse de phase va se traduire par un décalage de la phase de la ligne à retard. La fréquence de l'oscillateur se décalera de façon à conserver la même valeur de phase sur la ligne à retard.

L'ensemble de la chaîne de rétroaction pour une ligne à retard comporte trois éléments principaux (cf. Figure IV-10) : un amplificateur fort gain associé à un atténuateur réglable pour ajuster la condition d'oscillation et un coupleur pour prélever la fréquence d'oscillation. Des transformateurs de gain unitaire peuvent être placés sur chaque port de la ligne à retard afin de travailler en mode différentiel.

#### IV.1.2.b Le banc de contrôle

Un synoptique du banc de mesure est représenté sur la Figure IV-10.

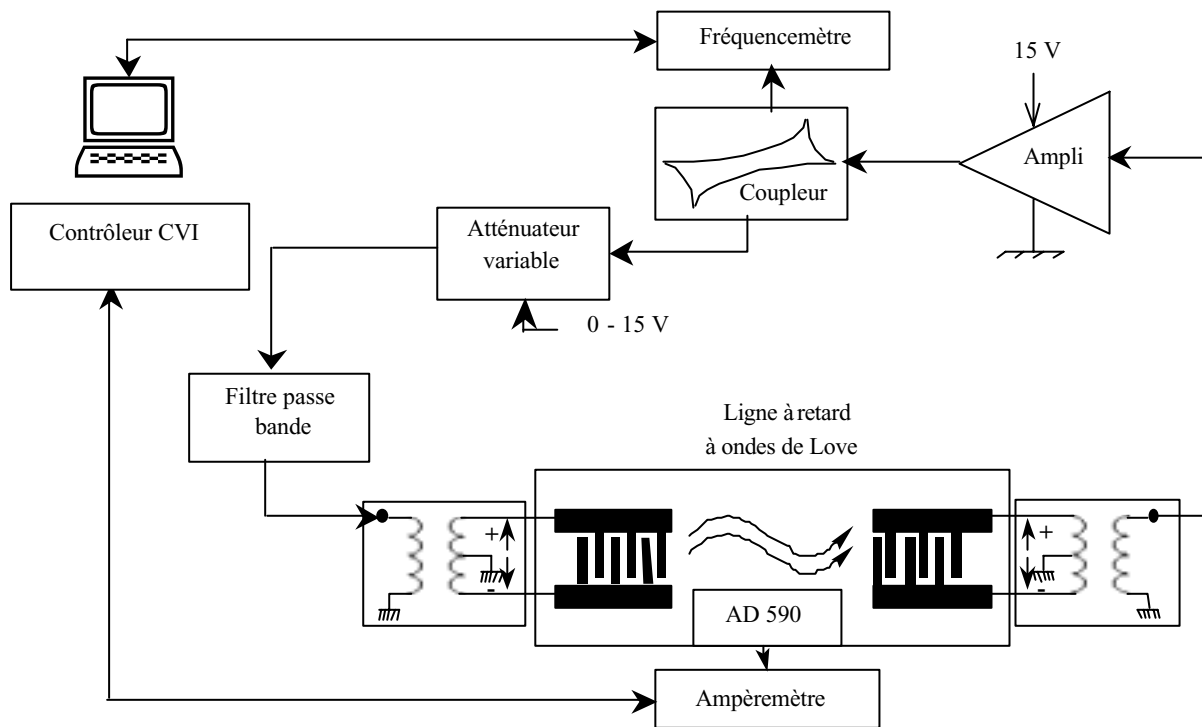


Figure IV-10 : Synoptique du banc de test de l'oscillateur à ondes de Love.

La fréquence de l'oscillateur est mesurée à l'aide d'un fréquencemètre HP 5313 A. La température du dispositif est suivie grâce à l'AD590 inclus dans un circuit électrique fermé, en mesurant l'intensité du courant électrique avec un ampèremètre (multimètre HP 34401 A).

Le banc est contrôlé par ordinateur à partir d'un programme développé dans l'environnement Labwindows CVI<sup>®</sup> (cf. annexe F). Celui-ci permet de visualiser en temps réel l'évolution de la fréquence d'oscillation du capteur, et de la température du système en fonction du temps. Les valeurs expérimentales sont stockées dans un fichier texte dont le nom est choisi au préalable par l'utilisateur.

L'intervalle de temps entre deux mesures, ainsi que l'échelle de visualisation en temps et en fréquence peuvent être modifiés au cours de la manipulation, ce qui permet d'améliorer la résolution de la lecture et/ou de l'acquisition au cours d'une période donnée.

#### IV.1.2.c Corrélation théorie expérience

Afin de corréler les résultats théoriques (en vitesse) avec les résultats expérimentaux (en fréquence), nous recherchons une relation entre variations relatives de fréquence et de vitesse.

Comme pour la variation relative de vitesse (cf. chapitre III), la variation relative de fréquence est définie par :

$$\frac{\Delta f}{f_0} = \frac{f - f_0}{f_0} \quad (\text{IV-4})$$

Où  $f_0$  représente la fréquence de l'oscillateur à ondes de Love pour un état donné de notre système, constituant un état de référence, et  $f$  la fréquence du système « perturbé », la perturbation étant liée à un ou plusieurs paramètres d'influence. Nous souhaitons exprimer la variation de fréquence relative théorique en fonction d'un paramètre  $\alpha$  perturbateur de l'onde. Pour cela nous utilisons la condition de phase de Barkhausen (équation (IV-3)) sous la forme :

$$k \times L_{cc} + 2\Phi_{IDT} + \Phi_{ampli} = 2\pi \quad \text{avec } k = \frac{2\pi}{V_p} f$$

En différenciant par rapport à  $\alpha$ , le terme  $2\Phi_{IDT} + \Phi_{ampli}$  pouvant être considéré indépendant de  $\alpha$ , nous obtenons :

$$\left. \frac{\partial k}{\partial \alpha} \right|_{V_p = \text{cte}} L_{cc} + \left. \frac{\partial k}{\partial \alpha} \right|_{f = \text{cte}} L_{cc} + k \frac{\partial L_{cc}}{\partial \alpha} = 0$$



Nous avons  $k \frac{\partial L_{cc}}{\partial \alpha} = 0$  quelle que soit la variable  $\alpha$ , sauf dans le cas où nous considérons la température du système comme variable perturbatrice. En effet une variation de température impliquera une dilatation du chemin de propagation, ce qui modifiera la valeur de  $L_{cc}$ . Ce cas particulier a été développé dans la thèse de Céline Zimmermann [IV-1].

En multipliant l'équation obtenue par  $\frac{V_g}{V_p} \frac{1}{k} = \frac{2\pi \frac{\partial f}{\partial k}}{2\pi \frac{f}{k}} \frac{1}{k}$  où  $V_g$  est la vitesse de groupe de

l'onde de Love, nous obtenons :

$$\left. \frac{1}{f} \frac{\partial f}{\partial \alpha} \right|_{V_p} = \frac{V_g}{V_p} \frac{1}{V_p} \left. \frac{\partial V_p}{\partial \alpha} \right|_f$$

Nous en déduisons alors la relation entre les variations de fréquence et de vitesse relatives théoriques pour un paramètre perturbateur  $\alpha$  autre que la température :

$$\boxed{\frac{\Delta f}{f_0} = \frac{V_g}{V_0} \frac{\Delta V}{V_0}} \quad (IV-5)$$

## ***IV.2 Caractérisations en milieu liquide***

### *IV.2.1 Généralités sur les caractérisations en milieu liquide*

Les deux grandeurs physiques dont nous allons étudier l'influence dans ce chapitre sont la viscosité ainsi que la conductivité électrique du liquide. Afin d'affiner l'analyse des résultats, nous présentons aussi une étude expérimentale sur l'influence du volume de liquide de test dans la cellule, ainsi que sur l'influence de la température.

Dans tous les cas, avant chaque nouvelle étape du protocole de test, nous attendrons la stabilisation de la fréquence d'oscillation du dispositif (environ  $1 \text{ Hz.s}^{-1}$  pendant 30 s).

IV.2.1.a Etude en mode « variation de viscosité ou variation de conductivité »

Ce type de manipulation consiste à introduire sur la surface sensible de notre dispositif un liquide de référence, ses paramètres physiques étant connus. Puis nous ajoutons dans notre cellule un volume supplémentaire de liquide de test qui nous permettra de faire évoluer la viscosité ou la conductivité électrique de la valeur souhaitée. Dans ce type de protocole, l'état de référence correspond au dispositif avec un liquide de référence. L'état de mesure correspond à une variation d'un (ou plusieurs) paramètre(s) du liquide.

Dans le cas particulier de l'étude de la conductivité électrique des solutions de test, compte tenu de la faible variation de signal attendue ( $\approx 20$  ppm d'après les résultats du paragraphe III.2.3), nous utiliserons un protocole qui permet de garder à chaque étape un volume total de solution dans la cellule proche du volume du liquide de référence. Pour cela nous enlevons un volume de liquide identique à celui précédemment ajouté avant l'étape suivante.

Pour ces expériences, des solutions aqueuses de glycérol et de chlorure de sodium ( $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ ) sont utilisées. Des tables concernant ces deux types de solutions permettent de déterminer en fonction d'un rapport massique entre l'un de ces produits et l'eau, la viscosité et la masse volumique pour des mélanges eau - glycérol, la conductivité électrique, la permittivité électrique, la masse volumique, ainsi que la viscosité pour des mélanges eau -  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$  (cf. annexe C).

La première étape de ce type de manipulations consiste donc à déterminer un protocole d'étapes permettant d'explorer la gamme de valeurs souhaitées pour un paramètre physique.

IV.2.1.b Etude en mode « viscosimètre »

Pour cette approche, nous préparons une série d'échantillons de liquide ayant les grandeurs physiques souhaitées, puis nous en injectons un certain volume dans notre cellule. Dans ce cas notre état de référence est le dispositif nu, et l'état de mesure est le dispositif avec une quantité d'un liquide de test donné.

IV.2.1.c Influence du volume du liquide de test

Dans toutes nos expériences en milieu liquide, le volume de l'échantillon introduit dans la cellule peut avoir une grande importance.

En effet, nous avons exprimé dans le chapitre II la profondeur de pénétration  $\delta$  de l'onde de Love dans le milieu liquide (§ II.2.1 a). Pour le dispositif de test, et en considérant de l'eau pure comme milieu de test, nous pouvons estimer cette valeur à environ 50 nm (cf. équation II-38). Si l'épaisseur du liquide est du même ordre de grandeur que  $\delta$ , l'onde sera réfléchiée et guidée dans le volume du liquide différemment selon l'épaisseur de ce dernier.

Pour s'affranchir de ce paramètre, il est important d'avoir une épaisseur de liquide très supérieure à  $\delta$ , ce qui permet de vérifier l'hypothèse d'un liquide semi-infini considérée pour l'étude théorique.

Sur la Figure IV-11, nous pouvons voir l'évolution de la fréquence d'oscillation de l'onde pour une augmentation du volume d'une solution d'eau pure dans la cellule.

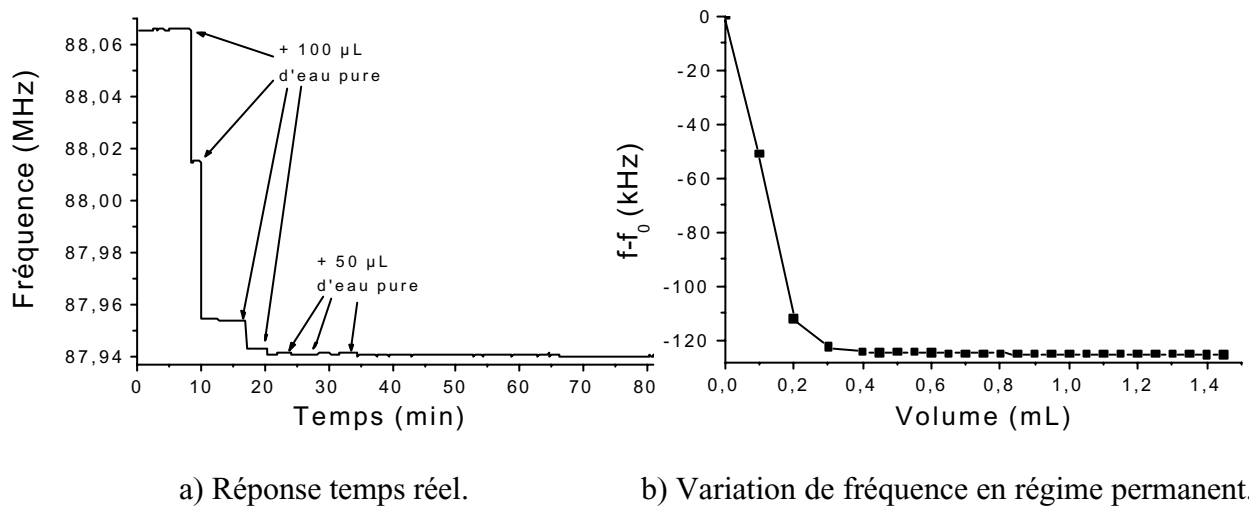


Figure IV-11 : Influence du volume d'une solution d'eau pure sur la fréquence d'oscillation de la ligne à retard.

Ainsi la variation de fréquence due à deux volumes différents de liquides identiques est négligeable si nous injectons au minimum 400 μL de solution dans la cellule. Pour une surface de 121 mm<sup>2</sup>, cela correspond à une épaisseur de liquide de l'ordre de 2,5 mm. Cette épaisseur importante est aussi liée à une non uniformité du liquide (mauvais mouillage) aux faibles volumes.

#### IV.2.1.d Influence de la température du système

Lors de l'étude des effets en température sur les dispositifs à ondes de Love, le coefficient

$$\text{VFT a été défini [IV-1] : } \text{VFT} = \frac{V_g}{V_p} \left[ \frac{V_p(T_0 \pm 1^\circ\text{C}) - V_{p0}}{V_{p0}} - \frac{L_{cc}(T_0 \pm 1^\circ\text{C}) - L_{cc0}}{L_{cc0}} \right]$$

où  $L_{cc_0}$  représente le chemin acoustique de notre ligne à retard à la température  $T_0$  (i.e. non dilaté).

Ce coefficient exprimé en  $\text{ppm} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ , exprime la sensibilité du dispositif à ondes de Love pour une variation de température autour d'une position d'équilibre.

Pour notre dispositif sur quartz de coupe ST, nous obtenons,  $VFT \approx +40 \text{ ppm} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ . Cela signifie que nous aurons une variation de 4 kHz pour une variation de température de  $1^\circ\text{C}$ . Il sera donc particulièrement important de réguler avec la meilleure précision possible la température du système. De plus, le suivi de ce paramètre et la connaissance de son influence sur le dispositif pourront permettre une correction des mesures.

#### *IV.2.2 Influence de la viscosité : caractérisation en mode « variation de viscosité »*

Comme nous l'avons vu précédemment, nous utiliserons différentes solutions aqueuses de glycérol pour nos expériences. Ces mélanges eau-glycérol n'étant pas chargés en ions, leur conductivité électrique est négligeable.

Cependant la température est un paramètre important à prendre en compte (cf. IV.2.1.d), et ce d'autant plus qu'elle modifie la valeur de la viscosité d'un liquide Newtonien (environ quelques % de sa valeur initiale pour une diminution de la température de  $1^\circ\text{C}$ ). Toutes nos expériences en viscosité ont été effectuées dans une pièce à une température de  $20^\circ\text{C}$  environ, et il sera important d'avoir une bonne stabilisation en température.

##### IV.2.2.a Réponse de l'oscillateur

Dans ce type d'expérience, nous avons tout d'abord estimé à 8 cP la viscosité maximale qui permet de satisfaire la première condition de Barkhausen (eq. IV-2). C'est-à-dire que pour des liquides de viscosité supérieure, les pertes visqueuses deviennent trop importantes pour avoir un fonctionnement de la ligne à retard en oscillateur.

Nous avons défini deux types de protocoles :

- Le premier consiste à avoir 500  $\mu\text{L}$  d'eau pure comme solution de départ, puis à rajouter différents volumes d'une solution aqueuse de glycérol à 54 % en masse, soit 7,6 cP environ. Ainsi nous augmentons la valeur de la viscosité de notre échantillon.

- L'autre protocole consiste à avoir 500  $\mu\text{L}$  d'une solution aqueuse de glycérol à 54 % comme solution de départ, puis à rajouter différents volumes d'une solution d'eau pure (1 cP environ). Ainsi nous diminuons la valeur de la viscosité de notre échantillon.

Nous présentons sur la Figure IV-12 (courbe du haut) la réponse en fréquence de l'oscillateur en temps réel pour un protocole comportant 15 injections successives de solution aqueuse de glycérol à 54 %. Dans une solution de 500  $\mu\text{l}$  d'eau pure au départ. Cela permet d'obtenir successivement 15 valeurs croissantes de viscosités de la solution sur le capteur.

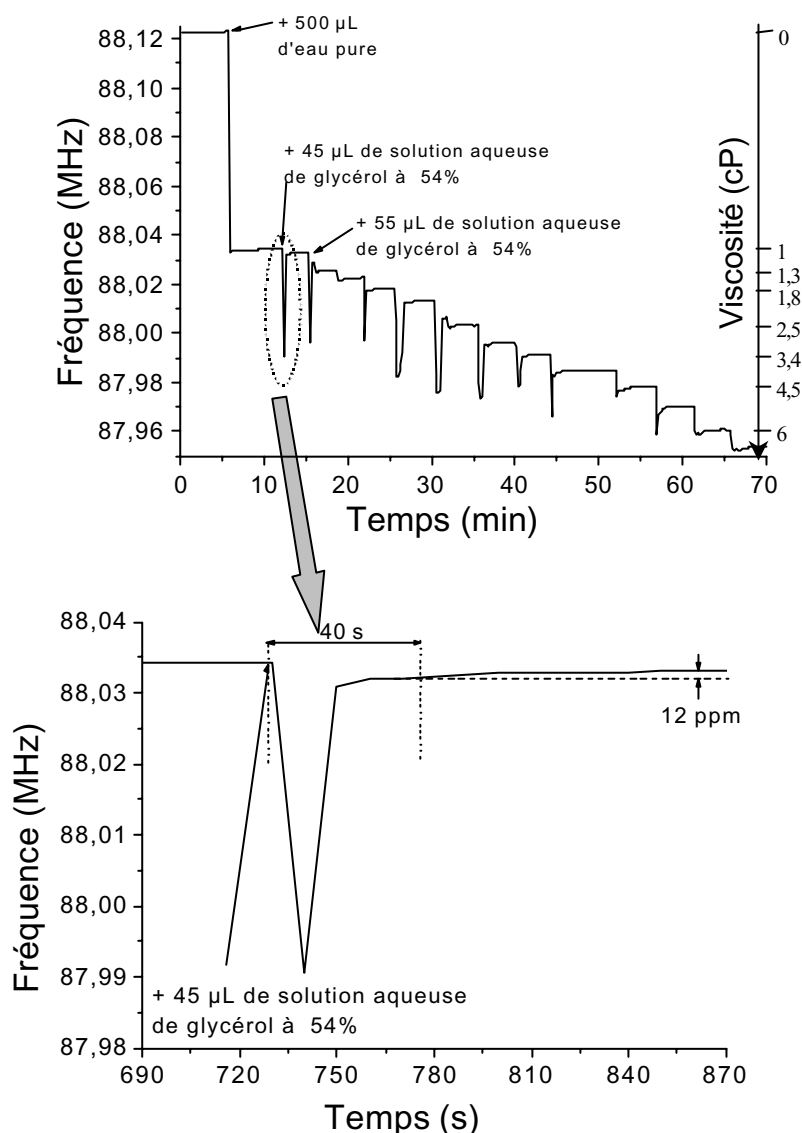


Figure IV-12 : Réponse en fréquence de l'oscillateur en fonction du temps pour différents échelons de viscosité croissante (haut) et zoom sur une réponse typique à l'injection d'un échantillon de liquide visqueux (bas).

Si, pour chaque étape du protocole, nous regardons la fréquence d'oscillation du dispositif à ondes de Love en régime permanent, nous constatons que sa valeur diminue lorsque la viscosité du liquide augmente, en accord avec les prévisions théoriques. De plus, nous observons au début de chaque étape une réponse transitoire, avec une diminution très rapide de la fréquence, suivie d'une remontée, avec une stabilisation à 10 ppm près après quelques dizaines de secondes environ.

La forte diminution de fréquence observée au début de chaque étape (cf. zoom Figure IV-12 bas) est attribuée aux différences de propriétés physiques entre la solution présente à la surface de la ligne à retard et l'échantillon aqueux de glycérol à 54 % injecté, celui-ci étant plus dense et plus visqueux. Après homogénéisation du nouvel échantillon, la fréquence tend de nouveau à se stabiliser.

La Figure IV-13 représente l'évolution de la température mesurée pendant l'ensemble du protocole précédent. Nous observons une assez bonne stabilisation en température, avec une variation de 0,1 à 0,2 °C environ au début de chaque injection d'échantillon liquide sur le capteur.

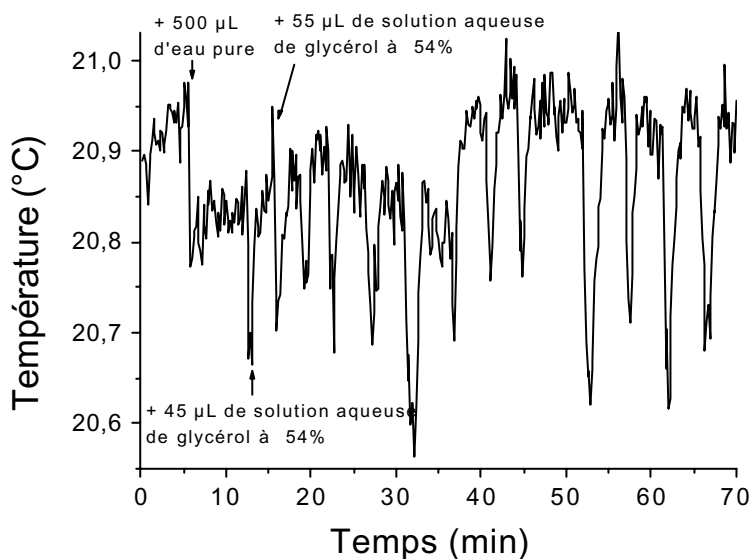


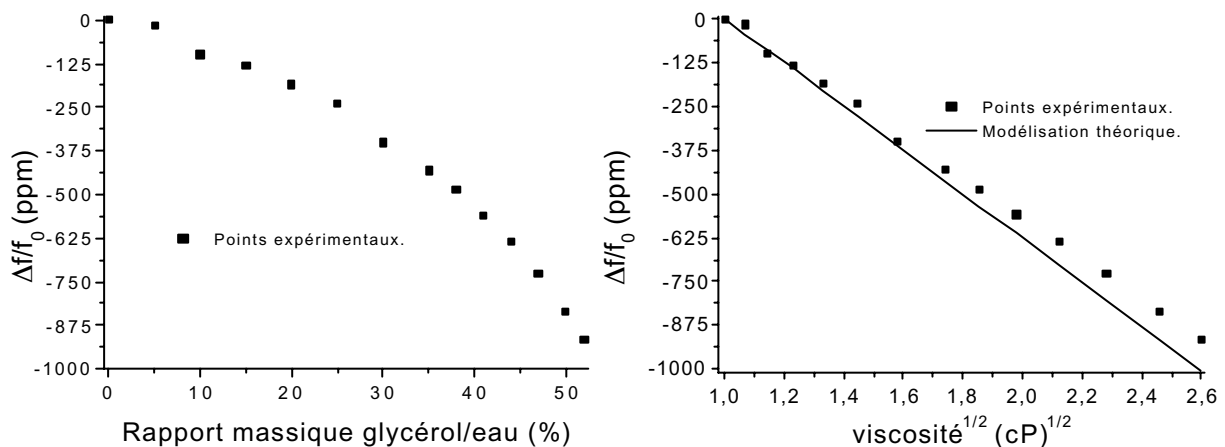
Figure IV-13 : Température du système pour le protocole incrémentant la viscosité.

De plus, la légère diminution de la température causée par la plus basse température de l'échantillon injecté à la micropipette par rapport à la cellule où s'effectuent les mesures contribue à cette réponse transitoire en fréquence.

Ce raisonnement est confirmé par l'absence d'un tel effet lors de l'injection d'un échantillon de solution identique à celle présente sur le dispositif (cf. Figure IV-11 pour un volume

supérieur à 400  $\mu\text{L}$ ). De même, cet effet est de moins en moins visible au fur et à mesure des injections successives de solution de glycérol, les paramètres physiques (notamment la viscosité) des solutions, celle sur le capteur et celle injectée, étant de plus en plus similaires (cf. Figure IV-12).

Afin de pouvoir comparer l'expérience et la théorie concernant les valeurs en régime permanent, nous exprimons les résultats sous la forme de la variation relative de fréquence en fonction des caractéristiques de la solution, pour chaque étape du protocole. Notre solution de référence est la solution d'eau pure. Ces résultats sont représentés sur la Figure IV-14 et la courbe théorique en fonction de la viscosité est superposée sur la Figure IV-14 b.



- a) Réponse de la ligne à retard en fonction du rapport glycérol / eau.      b) Réponse de la ligne à retard en fonction de la racine carrée de la viscosité.

Figure IV-14 : Influence d'une solution aqueuse de glycérol de viscosité croissante sur la fréquence relative de l'oscillateur.

Nous avons une meilleure concordance expérience, tous les mélanges sont obtenus grâce à des micropipettes. Celles-ci présentent une erreur de lecture, ainsi qu'une erreur sur la quantité effectivement prélevée, puis injectée dans la cellule. L'erreur en un point du protocole est la somme de toutes les erreurs des étapes précédentes entre les courbes expérimentales et théoriques en début qu'en fin de protocole. Cela peut s'expliquer par le fait que le type de protocole effectué ici accumule les erreurs au fil de chaque étape.

En effet, afin de réaliser notre. Nous avons ainsi pu estimer une erreur relative de l'ordre de  $\pm 10\%$  sur la viscosité en fin d'un protocole de 15 étapes.

Nous présentons sur la Figure IV-15, la fréquence de l'oscillateur pour un protocole décrémentant la viscosité de notre échantillon. Nous avons utilisé comme point de référence le premier point de l'expérience, c'est-à-dire celui où la viscosité est la plus élevée des échantillons. Nous voyons également que la fréquence d'oscillation du système augmente avec une bonne adéquation avec la courbe théorique.

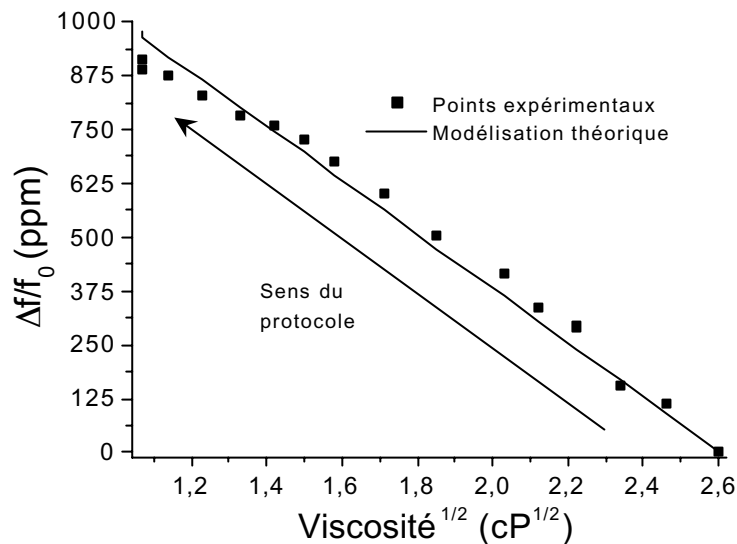


Figure IV-15 : Influence d'une solution aqueuse de glycérol de viscosité décroissante sur la fréquence relative de l'oscillateur.

Les expériences en mode « variation de viscosité », quoique assez délicates du fait d'une erreur cumulative à chaque étape du protocole, ont montré une bonne reproductibilité de la réponse du capteur pour plusieurs expériences en incrémentant, ou bien en décrémentant la viscosité de notre solution échantillon.

#### IV.2.2.b Pertes d'insertion

L'équation II-50 nous permet d'estimer théoriquement l'atténuation de l'onde de Love due à la présence du liquide Newtonien. Expérimentalement, nous mesurons à l'analyseur de réseau les pertes d'insertion de la ligne à retard pour un état donné de notre système, et nous regardons l'évolution des pertes induites par l'augmentation de la viscosité du liquide, par rapport à la solution d'eau pure de référence.

Cela permet de s'affranchir des pertes liées à la génération de l'onde, non prises en compte dans le modèle, et de pouvoir ainsi comparer les résultats théoriques et expérimentaux.



La méthode consiste à mesurer dans un premier temps les pertes d'insertion de notre ligne à retard pour une phase fixe ( $\varphi \approx 0^\circ$  par exemple, proche du centre du mode, cf. Figure IV-9) à l'état de référence. Puis nous regardons l'évolution de ces pertes pour la même phase après une modification de l'échantillon. Les résultats obtenus en incrémentant la viscosité du liquide sont présentés sur la Figure IV-16.

Les valeurs mesurées à l'analyseur de réseau sont exprimées en dB, et l'équation II-50 nous permet de déduire l'atténuation  $\alpha$  de l'onde en  $m^{-1}$  (cf. § III.2.1.a). La conversion des variations de pertes acoustiques entre ces deux unités s'effectue selon la relation suivante :

$$\Delta \text{Pertes}_{(\text{dB})} = 20.\lg[e^{-\alpha(\eta)d}] - 20.\lg[e^{-\alpha(\eta_{\text{eau}})d}] = -\frac{20}{\ln(10)} [(\alpha(\eta) - \alpha(\eta_{\text{eau}}))d] \approx -8,69(\alpha(\eta) - \alpha(\eta_{\text{eau}}))d$$

avec,  $\alpha$  : atténuation de l'onde ( $m^{-1}$ ), et  $d$  : distance de propagation de l'onde.

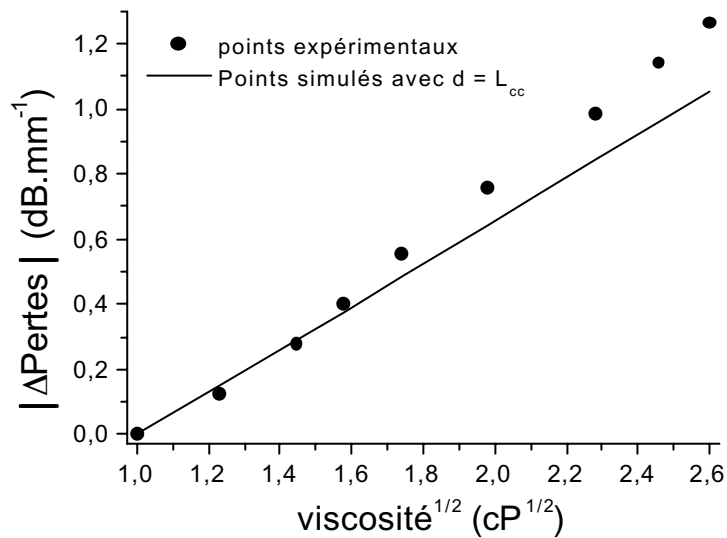


Figure IV-16 : Augmentation des pertes d'insertion de la ligne à retard pour un protocole incrémentant la viscosité (mesures à l'analyseur de réseau).

Sur la Figure IV-16, nous avons représenté les points expérimentaux, ainsi qu'une simulation des pertes visqueuses en considérant comme « chemin d'interaction » la distance centre à centre entre les IDTs ( $L_{cc}$ ). Le choix de l'utilisation de cette longueur est basé sur le fait que la plus grande partie de l'énergie de l'onde acoustique se propage sur  $L_{cc}$ .

Ainsi, les caractérisations en mode « variation de viscosité » ont permis d'obtenir des résultats intéressants, montrant un bon accord avec les résultats théoriques tant d'un point de vue variation de fréquence (ou de vitesse) que sur les pertes acoustiques.

Toutefois, la multiplication des actions sur notre échantillon de test augmente l'erreur que l'on effectue à chaque mesure. Si nous injectons directement une solution de mesure, et comparons la réponse par rapport au dispositif nu, nous devrions éliminer cette erreur cumulative. C'est ce que nous proposons de faire dans la partie suivante.

Par contre, les variations de fréquence mesurées seront plus grandes globalement, et l'erreur absolue sur chaque point sera plus grande aussi, quoique à peu près similaire pour l'ensemble des points.

### IV.2.3 Influence de la viscosité : caractérisation en mode « viscosimètre »

#### IV.2.3.a Modèle mécanique, résolution analytique

Pour ce type d'expérience, nous avons préparé une série de solutions aqueuses de glycérol de concentrations différentes. Nous explorons ainsi une gamme de viscosité allant de 1 cP à 8 cP. Nous utilisons le montage en oscillateur thermorégulé décrit précédemment. Plusieurs solutions d'une même concentration ont été mesurées (environ 6), afin de tester la reproductibilité des mesures. Ces résultats sont exposés sur la Figure IV-17.

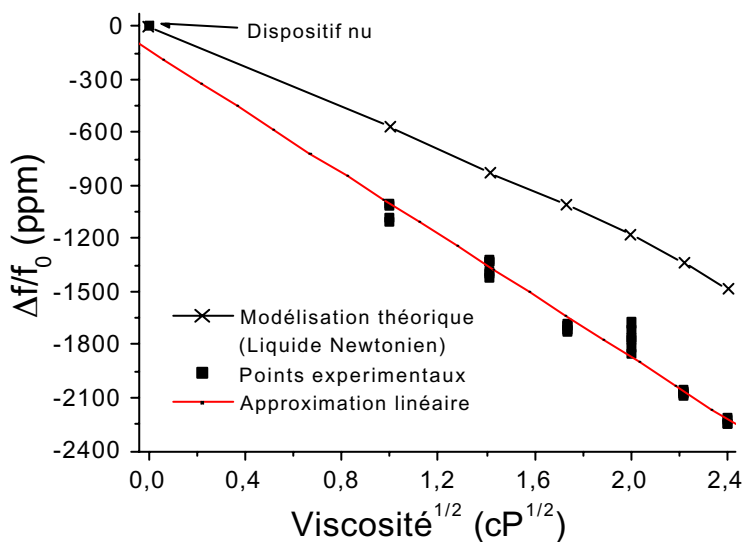


Figure IV-17 : Réponse en fréquence de l'oscillateur pour différentes concentrations de solutions aqueuses de glycérol (référence : ligne à retard nue).

Nous observons une assez bonne linéarité de  $\Delta f/f_0$  avec  $\sqrt{\eta}$ . Par contre, la correspondance avec les points calculés à partir de l'équation (II-50), en prenant comme référence le dispositif nu, est peu satisfaisante.

La principale différence avec les expériences précédentes étant liée à l'état choisi comme référence (dispositif nu ici, avec liquide précédemment), il est vraisemblable que c'est la présence même du liquide qui apporte une contribution supplémentaire à la diminution de fréquence observée. La prise en compte de la présence du liquide doit donc être améliorée. Si la conductivité électrique est faible pour un mélange eau pure – glycérol, la permittivité électrique est importante. Aussi la prise en compte de ce paramètre fait l'objet du paragraphe suivant.

#### IV.2.3.b Prise en compte de la présence de l'eau pure : influence de sa permittivité électrique

Nous proposons donc d'intégrer dans le modèle un paramètre supplémentaire qui est la permittivité électrique de l'échantillon. Pour cela nous devons tenir compte de la piézoélectricité du substrat de quartz. Afin d'estimer l'influence des paramètres électriques, nous comparons les résultats précédents avec ceux obtenus en utilisant la ligne à retard métallisée montée en différentiel (cf. § IV.1.1.d). Ce dispositif permet en effet de négliger expérimentalement l'influence des paramètres électriques (permittivité et conductivité électrique) sur les caractéristiques de propagation de l'onde de Love.

Nous pouvons voir sur le Tableau IV-2 les variations relatives de fréquences théoriques et expérimentales dues à la présence d'eau pure sur le dispositif. Ces résultats mettent en évidence l'influence de la permittivité électrique de l'eau pure sur la réponse du capteur.

	<b>Dispositif non métallisé</b>	<b>Dispositif métallisé</b>
<b><math>\Delta f/f_0</math> expérimental</b>	1270 $\pm$ 50 ppm	590 $\pm$ 5 ppm
	860 ppm	581 ppm
<b><math>\Delta f/f_0</math> théorique</b>	Résolution numérique $\rho_L = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ , $\eta = 1 \text{ cP}$ $\epsilon_L = 79.3\epsilon_0$ , $\sigma = 0 \text{ } \Omega^{-1}.\text{m}^{-1}$	Résolution analytique $\rho_L = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ , $\eta = 1 \text{ cP}$

Tableau IV-2 : Influence de l'eau pure sur la propagation de l'onde de Love : mise en évidence de l'influence de la permittivité électrique.

La bonne concordance des valeurs théoriques et expérimentales dans le cas du dispositif métallisé montre que les paramètres mécaniques sont bien pris en compte par la simulation. Par contre, dans le cas du dispositif non métallisé, la variation de fréquence calculée est très

inférieure à la valeur expérimentale. Cela est lié notamment à la présence du milieu de test au-dessus des électrodes interdigitées.

En effet considérons le schéma équivalent d'un transducteur présenté en Figure IV-18,

Avec

- $R_s$  : résistance représentant les pertes ohmiques des électrodes
- $C_t$  : capacité statique de l'IDT
- $Y_a = G_a + jB_a$  : admittance de rayonnement acoustique du transducteur
- $G_L$  : impédance représentant les pertes électriques dans le liquide adjacent

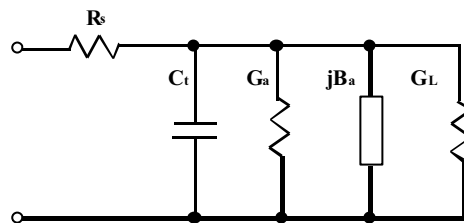


Figure IV-18 : Circuit équivalent de l'admittance d'une IDT.

Jakoby *et al.* [IV-8] ont montré que la permittivité électrique d'un liquide de test adjacent modifie fortement la valeur des paramètres de l'admittance équivalente du transducteur, excepté  $R_s$ , par rapport à leur valeur dans l'air. Cette influence devient négligeable pour des couches guidantes épaisses ( $h/\lambda > 1$ ), ou si la surface du dispositif est métallisée.

Ainsi dans notre cas, les résultats obtenus avec le dispositif non métallisé (Tableau IV-2) montrent que la permittivité électrique de l'eau pure augmente d'environ 700 ppm la diminution de fréquence liée à l'influence des paramètres mécaniques. Les résultats obtenus en mode viscosimètre avec la ligne à retard non métallisée, en tenant compte cette fois de cet effet expérimental de la permittivité électrique du liquide sur la génération de l'onde ( $\left(\frac{\Delta f}{f_0}\right)_{\text{eau}} \approx -680 \text{ ppm}$ ), sont représentés sur la Figure IV-19. Nous avons supposé en première approximation que la permittivité électrique du mélange eau-glycérol, pour une concentration de glycérol inférieure à 48 % en volume, restait proche de celle de l'eau ( $\epsilon_L = 79,3\epsilon_0$ ).

Nous constatons bien une meilleure adéquation entre les valeurs expérimentales et théoriques par rapport à la modélisation mécanique pure si nous tenons ainsi compte de l'effet de la présence de l'eau pure sur la variation de fréquence relative.

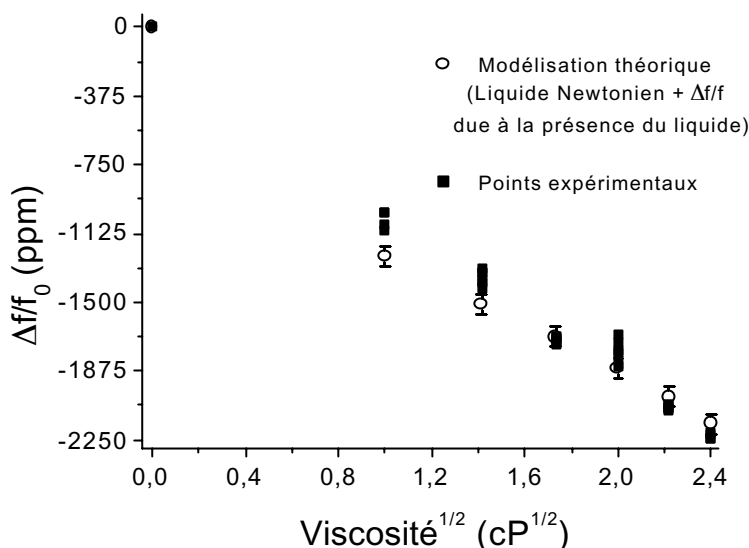


Figure IV-19 : Réponse en fréquence de l'oscillateur pour différentes solutions visqueuses. (Référence : dispositif nue). Modélisation théorique avec variation des paramètres mécaniques du liquide et influence (valeur expérimentale) de la permittivité électrique de l'eau pure.

#### IV.2.3.c Conclusion

Ainsi, la modélisation multicouche permet de rendre compte correctement des effets mécaniques d'un liquide sur la réponse du dispositif à ondes de Love. Les résultats obtenus confirment une forte influence de la viscosité du liquide sur la réponse du dispositif (plus de 1000 ppm pour une viscosité entre 1 et 8 cP), avec une relation linéaire entre  $\Delta f/f$  et  $\sqrt{\eta}$ .

Concernant la permittivité électrique du liquide, un modèle plus complet tenant compte des perturbations électriques des IDTs par le liquide présent au-dessus doit être étudié. Les résultats expérimentaux montrent qu'un liquide non conducteur de permittivité proche de celle de l'eau induit une diminution de fréquence proche de 700 ppm superposée aux effets mécaniques. En mode « variation de viscosité », le point de référence intègre cet effet électrique (à condition que les caractéristiques électriques du liquide restent identiques ou très voisines par rapport au liquide initial).

#### IV.2.4 Influence des paramètres électriques : caractérisation en mode « variation de conductivité »

Pour approfondir l'étude de l'influence des paramètres électriques du liquide, nous nous intéressons à des caractérisations du dispositif en mode « variation de conductivité ».

En présence d'un milieu liquide ionique (ici des solutions aqueuses de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ ), comme dans le cas d'un dispositif métallisé, il est indispensable d'utiliser la ligne à retard en différentiel (cf. §IV.1.1.d). De plus, comme expliqué dans le paragraphe IV.2.1.a, nous proposons de garder un volume de solution proche de 500  $\mu\text{L}$ . Pour cela, avant d'injecter un volume de solution concentrée en  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ , nous prélevons dans la cellule un volume identique à celui ajouté précédemment.

Sur la Figure IV-20, est représentée une réponse du capteur en temps réel en fonction de l'augmentation de la concentration de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ .

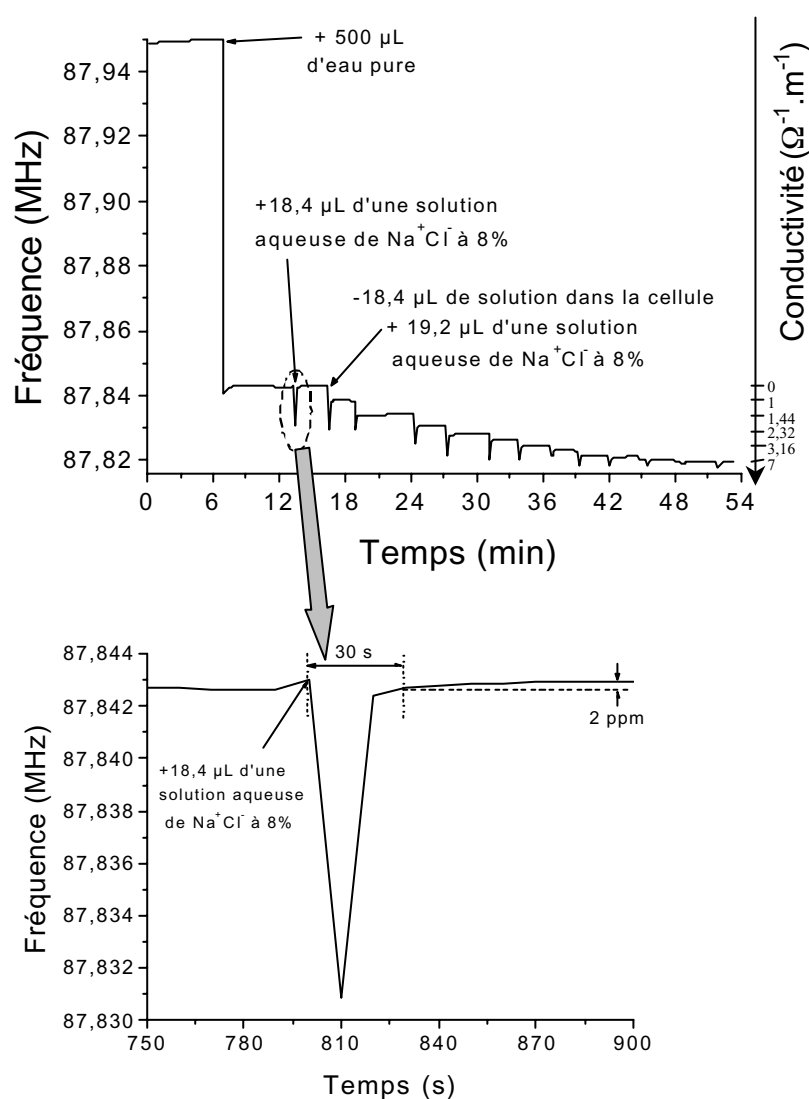
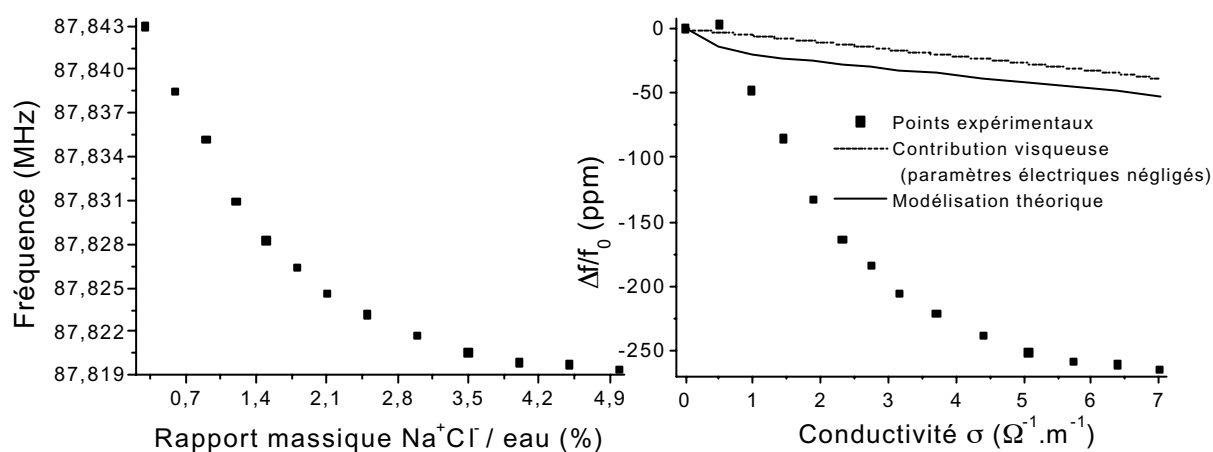


Figure IV-20 : Réponse en fréquence de l'oscillateur en fonction du temps pour différentes solutions électriquement conductrices (haut), et zoom sur une réponse typique à l'injection d'un échantillon de liquide conducteur.

La réponse de la ligne à retard est également dans ce cas instantanée. La fréquence d'oscillation se stabilise à 2 ppm près environ après quelques dizaines de secondes. Les pics du régime transitoire ont des amplitudes globalement plus faibles que lors de l'étude de l'influence de la viscosité (cf. IV.2.1.a). Cela est lié à une plus grande similitude entre les propriétés mécaniques de l'eau et de la solution concentrée de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ .

La Figure IV-21 montre la fréquence d'oscillation en régime stabilisé de la ligne à retard en fonction de la concentration massique de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$  dans l'eau. Nous constatons une saturation de la réponse pour les grandes concentrations. La variation de fréquence relative mesurée pour tout le protocole, soit depuis de l'eau pure (de conductivité électrique négligeable), à de l'eau très salée ( $50 \text{ g.L}^{-1}$ ,  $\sigma = 7 \text{ } \Omega^{-1}.\text{m}^{-1}$ ) est de  $-260 \text{ ppm}$  environ.



a) Fréquence d'oscillation en fonction du rapport  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$  / eau.

b) Variation relative de fréquence en fonction de la conductivité électrique.

Figure IV-21 : Réponse de la ligne à retard en fonction de la concentration de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ .

Remarque : En multipliant le rapport massique  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$  exprimé en % par 10, nous obtenons la concentration de sel en  $\text{g.L}^{-1}$  dans la solution.

Pour les modélisations théoriques, nous avons supposé que la permittivité électrique des solutions aqueuses de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$  reste proche de celle de l'eau pour des concentrations inférieures à  $50 \text{ g.L}^{-1}$ .

Nous observons une très mauvaise adéquation entre les valeurs expérimentales et théoriques. De nouveau, l'influence des paramètres électriques du liquide au-dessus des électrodes interdigitées semble importante, et la modélisation actuelle, qui concerne uniquement la

propagation de l'onde dans la structure multicouche, ne permet pas de prendre en compte cet effet.

Afin de vérifier expérimentalement la contribution mécanique par rapport aux effets électriques, un protocole identique au précédent a été réalisé avec la ligne à retard métallisée. Les résultats obtenus, reportés sur la Figure IV-22, montrent une bonne corrélation avec les résultats théoriques.

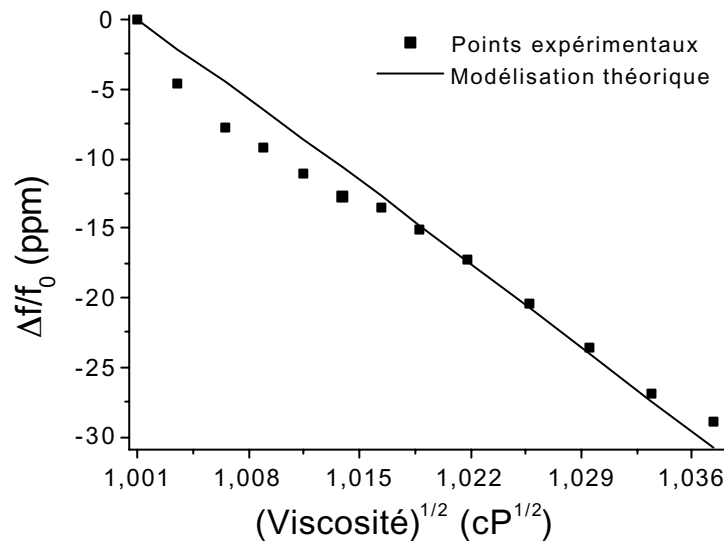


Figure IV-22 : Contribution visqueuse des échantillons de solutions aqueuses de  $\text{Na}^+\text{Cl}^-$ , mesures réalisées avec le dispositif métallisé.

Ainsi la majeure partie de la diminution de fréquence de la ligne à retard non métallisée est bien due à l'influence des paramètres électriques de la solution, et notamment de la conductivité électrique, la viscosité de la solution variant très faiblement au cours de l'expérience.

Néanmoins, la variation de fréquence relative obtenue, de  $-260$  ppm, pour une forte variation de conductivité électrique ( $0$  à  $7 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ), reste relativement faible par rapport à la forte influence des paramètres mécaniques, environ  $-1000$  ppm pour une viscosité de  $1$  à  $8$  cP.

### ***IV.3 Conclusion***

Dans ce chapitre, nous avons présenté dans un premier temps la mise au point de dispositifs de tests. Ces travaux ont nécessité en particulier, par rapport aux études menées par ailleurs



dans l'équipe sur l'application des dispositifs à ondes de love en milieu gazeux, d'une part, la conception et la réalisation d'une cellule de test adaptée, d'autre part l'adaptation du montage oscillateur afin d'utiliser la ligne à retard en différentiel. En effet, la proximité d'un plan conducteur (liquide conducteur, plan métallique) au dessus des électrodes interdigitées perturbe fortement les caractéristiques électriques des transducteurs, rendant la ligne à retard en montage simple inutilisable.

Dans un second temps, ces dispositifs de test ont fait l'objet de caractérisations en milieu liquide en fonction de la viscosité et de la conductivité électrique, à l'aide de solutions aqueuses de glycérol et de chlorure de sodium. Ces tests ont montré que le modèle actuel, permettant d'étudier la propagation de l'onde dans une structure multicouche, rend très bien compte des effets mécaniques (densité, viscosité). Par contre, les effets électriques (permittivité, conductivité), simulés en complétant le modèle et grâce à la résolution numérique, sont toujours inférieurs aux résultats expérimentaux. Il sera nécessaire d'approfondir cette partie de l'étude dans l'avenir, en considérant en particulier la forte influence de ces paramètres électriques sur le schéma équivalent des électrodes interdigitées.

Néanmoins, les résultats obtenus ont permis de vérifier notamment la grande sensibilité aux paramètres mécaniques (une augmentation de 2 cP seulement montre une diminution de la fréquence relative de 300 ppm environ) par rapport aux effets électriques (une saturation de la fréquence relative proche de -250 ppm est observée pour une solution aqueuse fortement conductrice par rapport à l'eau pure, non conductrice).

L'ensemble de ces éléments sera indispensable pour faciliter l'analyse des résultats lors de l'application des dispositifs à la détection d'espèces en milieu liquide, notamment pour mettre en évidence d'éventuelles variations de paramètres physiques du milieu de test, superposées aux modifications de la couche sensible lors de l'accrochage d'espèces.





**CHAPITRE V  
APPLICATION A LA DETECTION EN MILIEUX  
LIQUIDES.**



### *V.1 Modèle biologique*

De nos jours, la détection de molécules en milieu gazeux ou liquide nécessite généralement une instrumentation lourde, coûteuse en équipements et en temps, comme la chromatographie, et la spectrométrie. L'utilisation de ces systèmes nécessite d'effectuer des prélèvements sur les lieux d'analyses et les résultats concernant une éventuelle contamination sont obtenus après un temps très long. Les dispositifs à ondes acoustiques pourraient être dans certains cas à la base d'un système avantageux de remplacement.

#### *V.1.1 Généralités*

Les dispositifs à ondes acoustiques offrent des potentialités en particulier en termes de miniaturisation (portabilité), de contrôle en temps réel [V-1], et surtout en terme de sensibilité [V-2]. Un caractère de sélectivité est conféré par la présence d'une couche sensible, dont le rôle est de retenir préférentiellement certaines molécules ou familles de molécules. Le dispositif peut ainsi être orienté vers différentes applications de détection, en adaptant le matériau sensible utilisé.

Dans le cadre particulier des applications à la détection en milieu liquide, une polarisation transverse horizontale autorise la propagation d'ondes acoustiques sans pertes excessives d'énergie (cf. § I.1.2.d). Ainsi parmi les multiples dispositifs utilisables (QCM, SH-APM, Ondes de Love), notre choix s'est porté sur les ondes de Love, car ces dernières présentent une très bonne sensibilité à l'effet de masse (mécanisme prédominant lors des détections).

Dans ce mémoire, pour réaliser des expériences de détection, nous proposons d'utiliser comme système couche sensible / polluant, le complexe anticorps - antigène. Nous y voyons en particulier deux avantages : le premier est que les réactions immunologiques se font en milieu liquide et que de nombreuses études leur ont été consacrées. Le second est leur grande sélectivité (un anticorps ne s'accroche que sur son antigène spécifique). Ce dernier avantage est important pour la réalisation de systèmes multicateurs dédiés.

Cette partie de l'étude a pu être menée à bien grâce à une collaboration très étroite et fructueuse avec l'équipe d'Immunologie Moléculaire (Université Bordeaux 2) et soutenue notamment par la région Aquitaine.

V.1.2 Interaction antigènes – anticorps.

Le système immunitaire constitue un moyen de lutte des différentes espèces animales contre des agressions infectieuses et parasitaires. Bien que la plupart de ces agressions soient stoppées par la peau, beaucoup d'agents pathogènes pénètrent par les voies aériennes, digestives ou urogénitales.

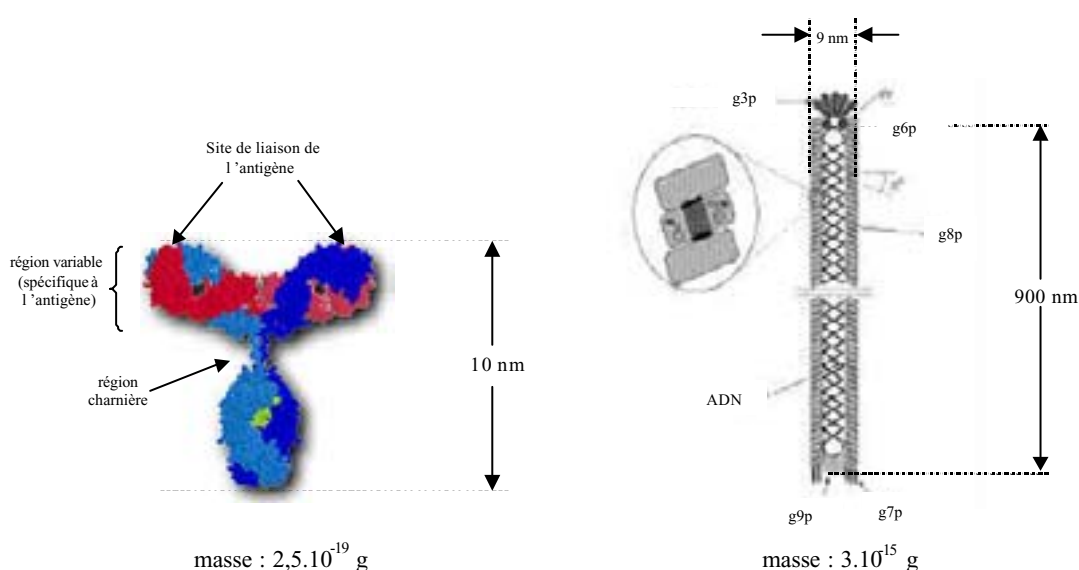
Les défenses immunitaires doivent donc être spécifiquement dirigées contre les substances étrangères (non soi), et ne pas attaquer les tissus propres de l'individu (soi). Les substances capables d'induire une réaction immunitaire sont les antigènes. Ils peuvent induire une production d'anticorps spécifiques.

Les anticorps, aussi appelés immunoglobulines, ont la même structure de base, mais ils sont différents au niveau de la région qui les lie à l'antigène (région variable). Un grand nombre d'antigènes peut être reconnu grâce à la grande diversité et la spécificité des anticorps.

Il existe cinq classes d'immunoglobulines différenciées par leurs structures et leurs fonctions : IgG, IgA, IgM, IgE, IgD.

V.1.3 Choix du modèle couche sensible-polluant

Dans le cadre de nos premières études de faisabilité de détection en milieu liquide, une IgG anti M13 de souris (anti M13 ou AM13), et un virus appelé bactériophage M13 (M13 ou phage) ont été utilisés. Ces deux dernières molécules sont représentées sur la Figure V-1.



Représentation : Cours de microbiologie en ligne de l'université de Leicester (<http://www-micro.msb.le.ac.uk>).

Figure V-1 : Représentation d'un anticorps (gauche), et du phage M13 (droite).

Nous pouvons remarquer la différence de masse entre le phage et l'anticorps. Le M13 est environ 10000 fois plus « lourd » que l'anti M13.

Plusieurs propriétés ont motivé le choix du bactériophage M13 comme polluant « modèle » :

- tout d'abord, les bactériophages M13 sont des virus aisés à dénombrer en utilisant leur propriété d'infecter spécifiquement les bactéries *Escherichia coli* (*E. Coli*).
- ensuite l'anticorps monoclonal de souris reconnaît de façon spécifique la protéine g8p présente à de nombreux exemplaires à la surface du bactériophage M13 (cf. Figure V-1).
- de plus, la grande taille du M13 est comparable à celle de nombreux virus pathogènes, et sa masse assez élevée permettra d'avoir un « fort » effet de masse lors de l'immobilisation, ce qui sera intéressant pour ces premiers tests de faisabilité.

Les forces mises en jeu lors des interactions antigènes – anticorps sont des liaisons chimiques faibles. Ces différentes liaisons sont :

- les liaisons hydrogènes : liaison entre un atome d'hydrogène d'une molécule et un doublet libre d'un atome très électronégatif (par exemple, l'oxygène d'une autre molécule)
- les forces électrostatiques : attraction de deux groupes ioniques de charges opposées
- les forces de Van der Waals : interactions entre deux dipôles électrostatiques
- les liaisons hydrophobes, association de groupements non polaires hydrophobes d'où les molécules d'eau sont exclues.

Ces différentes liaisons bien que faibles, assurent par leur grand nombre une énergie de liaison assez élevée. Comme nous le verrons par la suite, les énergies de liaison mises en jeu nous permettront de déstabiliser la liaison Anti M13 – M13. Nous pourrons ainsi décrocher les phages, afin d'une part de les dénombrer, et d'autre part d'envisager ainsi une régénération du capteur en gardant la même couche sensible.

La grande surface d'immobilisation spécifique du M13 ( $\approx 8,2 \times 10^3 \text{ nm}^2$ ) comparée à la surface spécifique d'immobilisation de l'Anti M13 ( $\approx 100 \text{ nm}^2$ ) autorise principalement deux types d'immobilisations (cf. Figure V-2).

Nous pouvons penser que pour une quantité de phages donnée le signal acoustique dépendra des types d'immobilisation effectivement mis en jeu. En effet des calculs simples montrent que si un phage s'accroche dans une position « couchée », il occupera environ quarante anticorps (nous tenons compte pour ce calcul de la demi surface d'immobilisation du bactériophage dirigée vers les anticorps), alors qu'en position « debout » il n'occupera qu'un anticorps.

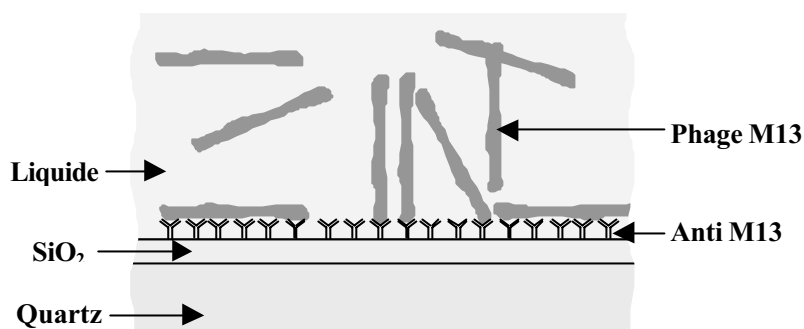


Figure V-2 : Immobilisations possibles entre les phages et les anticorps.

Il faut noter que, l'anticorps étant dirigé contre la protéine g8p, qui est absente des extrémités du phage, la position debout ne devrait se produire qu'en présence d'une très grande quantité de phages.

## V.2 La couche sensible d'anticorps

### V.2.1 Greffage de la couche sensible sur la surface du capteur.

La première étape qui permet d'avoir une ligne à retard en configuration capteur consiste à déposer une couche d'anticorps anti M13 appropriée à la surface du  $\text{SiO}_2$ , compatible avec la propagation des ondes de Love, et conservant ses propriétés d'immobilisation sélective vis-à-vis du bactériophage cible.

L'immobilisation de cette couche sensible s'effectue en milieu liquide tamponné (PBS : Phosphate Buffered Saline) à une température de  $37^\circ\text{C}$ . La cellule utilisée est celle décrite dans le chapitre précédent (Figure IV-5), avec une cellule et un joint en téflon, résistant aux produits tels que l'acide sulfurique et l'acétone, utilisés lors de la procédure de nettoyage de la surface de la ligne à retard, et présentant peu d'affinités vis-à-vis des protéines utilisées (anticorps et bactériophages).

Afin de promouvoir l'immobilisation de la couche sensible d'anti M13, une étape préliminaire de préparation de la surface du  $\text{SiO}_2$  est mise en œuvre. Une molécule de DTSP [3,3' dithio-bis (propionic acid N-hydroxysuccinimide ester)] est utilisée, elle se fixe à la surface du  $\text{SiO}_2$ , puis l'anticorps peut s'accrocher sur la partie libre de cette molécule.

Enfin les sites non spécifiques sont saturés avec une solution de BSA (Bovine Serum Albumin). Ainsi, le phage M13 (le polluant) s'accrochera uniquement sur l'anticorps spécifique.



Les différentes solutions utilisées ont les propriétés suivantes :

- H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> : acide sulfurique (4N).
- H<sub>2</sub>O : eau distillée.
- Ethanol : Solution d'éthanol à 95 %.
- Acétone
- PBS : solution saline tamponnée (NaCl 137 mM, KCl 2,7 mM, Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> 8 mM et KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> 1,45 mM).
- DTPS/DMSO : DTPS à 0,4 % dans du DMSO (diméthylsulfoxyde).
- Anticorps : anti M13-gP8 monoclonal ( Amersham-Pharmacia Biotech) solution finale : 250 µg.ml<sup>-1</sup>.
- PBS BSA : BSA (Bovine Serum Albumin) à 0,1 % dans du PBS.

Le protocole détaillé est décrit dans le Tableau V-1.














<u>Etape</u>	<u>Action</u>	<u>Représentation schématique</u>	<u>Durée</u>
<b>Nettoyage de la surface du SiO<sub>2</sub>.</b>	500 µL d'une solution d'acide sulfurique (H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> 4N).		10 minutes
	500 µL d'eau (3 fois).		10 minutes
	500 µL d'éthanol (2 fois).		10 minutes
	500 µL d'acétone (2 fois).		10 minutes
	Rinçage au PBS (3 fois).		
<b>Préparation du greffage.</b>	500 µL d'une solution de DTPS dans du DMSO à 0,4 %.		75 minutes
	Rinçage au PBS (2 fois).		
<b>Greffage de l'anticorps.</b>	400 µL de PBS.		10 minutes
	+ 100 µL d'anticorps.		180 minutes
	Rinçage au PBS (2 fois).		
<b>Saturation.</b>	500 µL d'une solution de PBS BSA à 0,1 %.		75 minutes
	Rinçage au PBS (2 fois).		
<b>Stockage.</b>	500 µL de PBS.		

Tableau V-1 : Protocole de greffage de l'anticorps anti M13 sur la surface de la ligne à retard.

Tous les paramètres (volume et concentration des solutions) du dépôt de la couche sensible ont été optimisés de façon à obtenir une monocouche sensible d'anticorps homogène sur la surface du capteur délimitée par la cellule de test en téflon.

Afin de vérifier le greffage de la couche sensible, et l'accessibilité des sites actifs, une technique immunologique (la méthode ELISA) a été utilisée.

### *V.2.2 Validation du greffage de la couche sensible.*

#### *V.2.2.a Validation biologique du dépôt de la couche sensible.*

La méthode ELISA (Enzyme Linked Immunosorbent Assay), consiste à révéler la présence d'anticorps quand l'antigène correspondant est fixé sur un support. La présence de l'anticorps est révélée par une réaction enzymatique colorée.

Pour vérifier la présence de l'anti M13 de souris sur la surface de la ligne à retard ( $\text{SiO}_2$ ), nous utilisons un anticorps de chèvre anti-IgG de souris marqué avec une enzyme (péroxydase). Cette biomolécule s'accroche sur toutes les immunoglobulines IgG de souris donc sur l'anti M13 de souris. Puis une solution d'OPD (orthophénylènediamine) et  $\text{H}_2\text{O}_2$  (eau oxygénée) est ajoutée. Cette solution incolore réagit avec la peroxydase donnant une réaction colorée que nous pouvons alors quantifier grâce à un colorimètre ELISA.

La présence de l'anticorps immobilisé a aussi été vérifiée sur un autre type de biomolécule, toujours en utilisant la méthode ELISA. Ce test a aussi permis de valider la fonctionnalité de l'anticorps en mesurant la possibilité d'un anticorps anti salmonelle de se lier à son antigène (une bactérie salmonelle) après greffage sur la surface de la ligne à retard. Pour cela, une solution contenant la bactérie est placée en incubation sur le capteur revêtu de la couche d'anticorps. Puis la liaison bactérie – anticorps est rompue par une élution à faible pH (Glycine 0,1 M, pH 2,2). Les bactéries ainsi éluées sont déposées sur un milieu spécifique dans une boîte de Pétri, et après une nuit d'incubation à  $37^\circ\text{C}$ , les colonies formées sont comptées. Leur présence effective valide le protocole de dépôt et de fonctionnalité de la couche sensible d'anticorps.

Ainsi, il a été montré que les anticorps sont fixés sur la surface du capteur par l'intermédiaire du DTSP.

Après élution, nous pouvons réutiliser la couche sensible d'anticorps toujours présente à la surface du capteur. Les tests ELISA concernant cette couche qui pourrait être utilisée pour une deuxième détection montrent une perte de signal de l'ordre de 10 % environ. La sensibilité et le seuil de détection de notre capteur en seraient diminués au moins d'autant.

Nous pouvons déjà à cette étape utiliser un avantage des dispositifs à ondes acoustiques pour le contrôle du dépôt de la couche sensible. En effet, la méthode ELISA, l'une des plus utilisées en biologie, a l'inconvénient de ne pouvoir être réalisée qu'après tout le protocole de dépôt, et est de plus destructrice par rapport à notre utilisation. Les dispositifs à ondes acoustiques permettent un suivi en temps réel de l'immobilisation des anticorps.

### V.2.2.b Réponse acoustique de la ligne à retard au dépôt de la couche sensible

La ligne à retard utilisée pour les expériences de détection est identique à celle utilisée pour la caractérisation physique des milieux liquides (cf. Tableau IV-1). La ligne à retard est montée en oscillateur, les manipulations biologiques sont effectuées sous hotte P<sub>2</sub> (Protégée), et notre système est thermorégulé à une température de 37°C. Les mesures en fréquence et en température sont effectuées toutes les 10 secondes.

Sur la Figure V-3 et sur la Figure V-4 sont représentées respectivement une acquisition en fréquence et en température pendant le protocole de dépôt de l'anti M13.

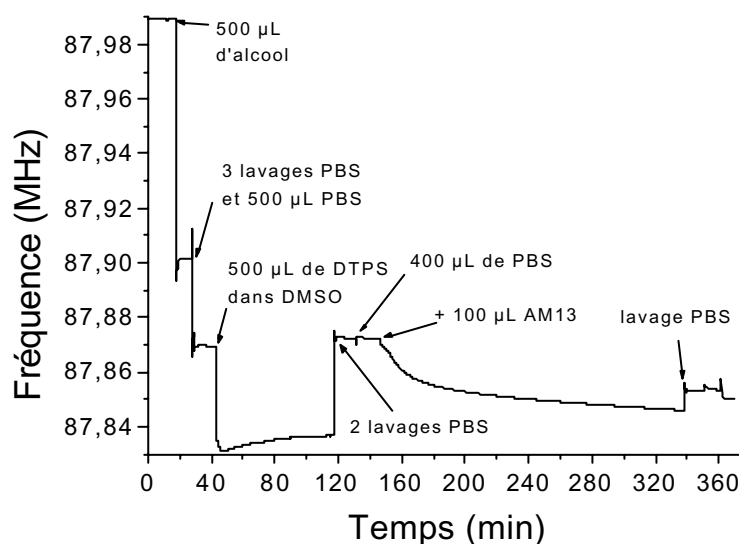


Figure V-3 : Réponse en fréquence du capteur lors du protocole de dépôt de la couche sensible.

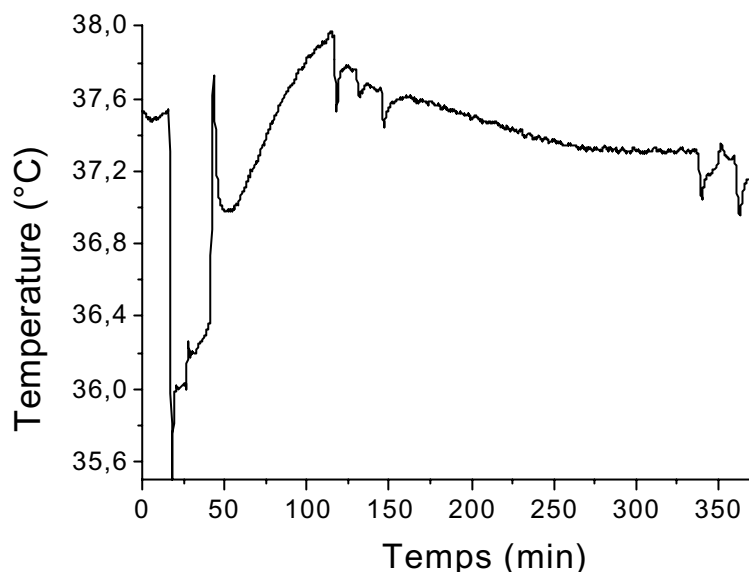


Figure V-4 : Réponse en température du système lors du protocole de dépôt de la couche sensible.

Il est important de rappeler le comportement de la ligne à retard en fonction de la variation de trois paramètres de notre système.

La réponse en fréquence du capteur est quasi instantanée. Cela signifie que lors de l'ajout d'un liquide ayant des propriétés physiques invariables en fonction du temps, la fréquence d'oscillation du capteur se stabilise au voisinage d'une fréquence d'équilibre (fonction des propriétés du liquide) dans un temps très court (quelques dizaines de secondes) correspondant à la stabilisation de l'environnement du capteur (homogénéisation du liquide en cas de mélange, stabilisation de la température).

- La fréquence du capteur varie avec un signe opposé à la variation de viscosité du liquide. Pour le dispositif de test, nous avons une sensibilité à la viscosité expérimentale  $S_{\sqrt{\eta_f}} = 627 \text{ ppm.cP}^{-1/2}$  (cf. § IV.2.2.a).
- La variable VFT (Variation de fréquence en fonction de la température) introduite au chapitre précédent vaut  $+40 \text{ ppm.}^\circ\text{C}^{-1}$ . Cela signifie que la fréquence d'oscillation de la ligne à retard varie d'environ  $+3,6 \text{ kHz}$  pour une variation de  $+1^\circ\text{C}$  de la température du système.

La réponse de la ligne à retard sur la Figure V-3 peut s'expliquer durant tout le protocole si nous tenons compte des viscosités des différentes solutions ( $\eta_{\text{DTPS/DMSO}} > \eta_{\text{PBS}} > \eta_{\text{éthanol}}$ ), de l'immobilisation progressive des anti M13, et de la variation de température.

Nous avons représenté sur la Figure V-5 un zoom sur l'acquisition en fréquence et en température correspondant à l'étape de dépôt de l'anti M13.

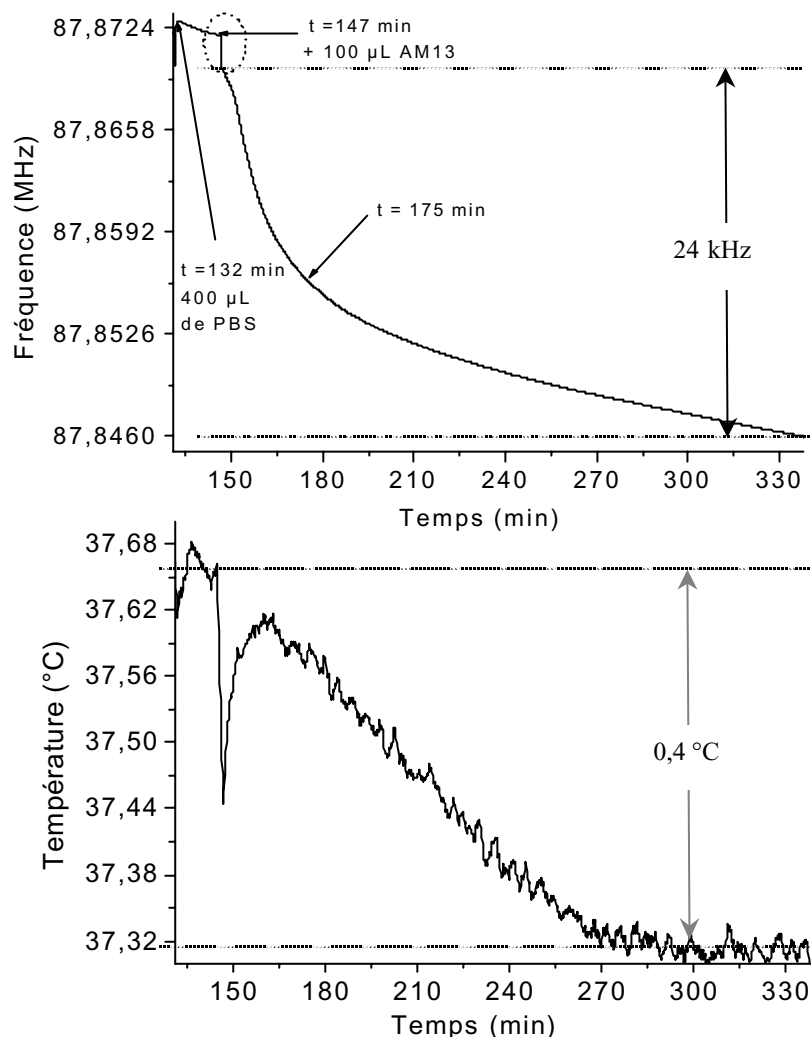


Figure V-5 : Réponse en fréquence de la ligne à retard et température du système lors du protocole de dépôt de la couche sensible

Nous pouvons voir sur la Figure V-5 les deux étapes concernant l'introduction de l'anti M13 dans la cellule de test. Tout d'abord, à  $t = 132$  min, une solution de  $400 \mu\text{L}$  de PBS est injectée dans la cellule afin de se placer dans des conditions de liquide semi-infini. Après stabilisation de la fréquence ( $\approx 1 \text{ Hz}\cdot\text{s}^{-1}$  durant 30 s)  $100 \mu\text{L}$  de la solution d'anticorps est

introduite. Nous distinguons alors trois domaines distincts qui dépendent de la cinétique du dépôt de la couche.

- Tout d’abord juste après l’ajout de la solution d’anticorps, nous observons une diminution très rapide de la fréquence d’oscillation du capteur due à la modification des propriétés physiques du liquide (cf. zone entourée sur Figure V-5).
  - Ensuite, pendant environ 30 minutes, nous constatons une diminution très significative du signal qui témoigne du fait que les anticorps se greffent en grand nombre sur la surface libre du capteur.
1. Enfin, il apparaît une saturation progressive du signal qui s’explique par le fait que la plus grande partie de la surface du capteur est déjà occupée par les anticorps, ce qui ralentit la suite du greffage.

Ainsi la variation de fréquence que l’on peut attribuer au greffage de la couche sensible est estimée à  $-24$  kHz après trois heures d’incubation. La variation de température observée durant cette immobilisation est de  $-0,4^{\circ}\text{C}$ , qui correspond à une variation de fréquence de  $-1,5$  kHz, avec une précision estimée à  $\pm 0,2^{\circ}\text{C}$ , intégrant la résolution du capteur et les variations rapides de température en début d’étape. Cela ramènerait à  $-22,5 \pm 0,7$  kHz la variation de fréquence corrigée correspondant au greffage.

Afin de vérifier le caractère reproductible de ce dépôt, nous avons utilisé deux dispositifs de caractéristiques acoustiques identiques, et effectué trois dépôts selon le même protocole. Nous avons relevé la variation en fréquence due au greffage de l’anti M13. Les résultats sont reportés sur le Tableau V-2.

	Variation de fréquence mesurée	Variation de température mesurée	Variation de fréquence corrigée en température
<b>dépôt 1 / ligne 1</b>	- 23,9 kHz	- 0,4 °C	- 22,5 kHz
<b>dépôt 2 / ligne 2</b>	- 25,6 kHz	- 0,4 °C	- 24,1 kHz
<b>dépôt 3 / ligne 2</b>	- 22,8 kHz	- 0,1 °C	- 22,44 kHz

Tableau V-2 : Reproductibilité de l’immobilisation de la couche sensible d’anticorps sur la surface de la ligne à retard.

Remarque : L'erreur en fréquence calculée ne tient compte que de l'influence de la température sur la ligne à retard physique, et non de l'influence de la température sur les paramètres physiques du liquide.

Le Tableau V-2 montre une assez bonne reproductibilité du dépôt de la couche sensible, et le contrôle en temps réel de tout le processus de dépôt de la couche sensible est donc tout à fait envisageable.

### *V.2.3 Conclusion*

Dans cette partie, un protocole permettant le dépôt de la couche sensible sur la surface du capteur a été proposé. Ce dernier a été optimisé de façon à obtenir une couche d'anticorps la plus homogène possible à la surface du capteur. En utilisant une ligne à retard à ondes de Love, nous avons montré qu'il est possible de suivre en temps réel tout le protocole de greffage de la couche.

A ce niveau nous pouvons mettre en évidence l'intérêt d'une acquisition temps réel. En effet la validité du dépôt, et aussi la fonctionnalité du capteur, sera vérifiée lorsque le signal observé correspond à la diminution de fréquence attendue. Dans le cas contraire le protocole de dépôt d'anticorps pourra être arrêté immédiatement et recommencé. Il ne sera pas nécessaire d'avoir recours aux méthodes biochimiques (ELISA) qui nécessitent des manipulations supplémentaires, longues et destructrices.

Le biocapteur ainsi réalisé est prêt pour des expériences de détection. Nous présentons dans la partie suivante les expériences d'immobilisation du bactériophage M13.

### *V.3 Application à la détection de bactériophages*

Pour les différentes expériences une solution de bactériophages est titrée selon la méthode décrite plus loin (§ V.3.2.b). Ainsi nous disposons d'une solution à partir de laquelle nous pouvons préparer des échantillons de test à la concentration souhaitée.

V.3.1 Protocole d'immobilisation du bactériophage sur la couche sensible

La longue durée du protocole du greffage de l'anticorps (environ sept heures) nécessite de réaliser les expériences de greffage de la couche sensible et d'immobilisation du phage sur deux jours. Entre les deux expériences, le capteur est stocké dans une solution de PBS à 4°C durant toute une nuit.

Au début de la seconde étape, nous imposons et attendons la stabilisation de la température du système au voisinage de 37°C.

Puis l'immobilisation du bactériophage est réalisée suivant le protocole décrit dans le Tableau V-3. Nous remarquons que le principe de l'introduction de la solution de bactériophages dans la cellule de mesure est identique à celui de l'introduction de l'anticorps. Tout d'abord une solution initiale de PBS est placée dans la cellule, le volume de cette dernière est déterminé de manière à avoir un milieu semi-infini. Puis après la stabilisation de la fréquence d'oscillation du capteur, une solution de bactériophages est injectée.

Etape	Action	Représentation	Durée
<b>Nettoyage du capteur.</b>	Rinçage au PBS (2 fois).		
	500 µL d'une solution PBS (2 fois).		10 minutes
	500 µL d'une solution d'eau pure		10 minutes
<b>Immobilisation du bactériophage</b>	500 µL d'une solution PBS		
	+ XX µL d'une solution de bactériophages*		2 heures

\* Le volume et la concentration en  $2 \text{ pfu.mL}^{-1}$  de la solution de bactériophages sont choisis en fonction de l'application souhaitée.

Tableau V-3 : Protocole d'immobilisation du bactériophage M13 sur la surface du capteur.

Comme dans le cas du greffage de la couche sensible, il est possible de vérifier par des méthodes immunologiques l'immobilisation du bactériophage sur le capteur, ainsi que d'estimer la « quantité » effectivement immobilisée. Cette quantification s'appelle la « titration ».

<sup>2</sup> pfu : (Plaque-Forming Units) nombre de plages de lyse comptées sur une boîte de Pétri après infection de bactéries *E. Coli* par les bactériophages M13 (cf. § V.3.2.b).



V.3.2 Validation biologique de l'immobilisation : titration des bactériophages

V.3.2.a Elution des bactériophages

L'éluion consiste à « décrocher » les bactériophages immobilisés sur la surface du capteur, elle s'effectue juste après les deux heures de détection.

Dans un premier temps, la solution présente dans la cellule (PBS + phages non accrochés) est prélevée et stockée dans un premier tube à essais. Puis, nous effectuons 10 rinçages avec une solution de TBS/Tween (Tris : 25mM, NaCl: 136 mM, KCl: 20,7 mM et 0,1% Tween 20). Enfin, l'éluion des bactériophages immobilisés se fait avec 500  $\mu$ L d'une solution de glycine (0.1 M, pH 2.2) pendant 10 minutes, cette dernière est tamponnée avec du TrisHCl (1 M, pH 9). Les bactériophages ainsi élués et présents dans la solution glycine / TrisHCL sont stockés dans un second tube à essais.

V.3.2.b Titration des bactériophages

Deux titrations complémentaires sont réalisées. Les bactériophages dénombrés dans le second tube à essais correspondent à ceux qui ont été effectivement immobilisés. Les bactériophages non immobilisés, dénombrés dans le premier tube à essais, permettent de confirmer les résultats obtenus avec plus ou moins de précision selon les quantités relatives de phages immobilisés et non immobilisés.

La procédure de titration est semblable à celle décrite au paragraphe V.2.2.a. La solution de bactériophages est diluée plusieurs fois. Un volume de 100  $\mu$ L de chacune des dilutions est mis en incubation avec 200  $\mu$ L de cellules *E. coli* (X11Blue:recA1, endA1, gyrA96, thi-1, hsdR17, supE44, relA1, lac[F'proAB lacZ M15 Tn10(Tetr)] Stratagene) durant 30 minutes afin de permettre l'infection des bactéries indicatrices par les bactériophages.

Puis l'ensemble bactériophages + bactéries indicatrices est mélangé à 3 mL de gélose molle maintenue à 56°C. L'ensemble est rapidement étalé en deuxième couche dans une boîte de Pétri contenant 30 mL de gélose dure L (10g/l Tryptone, 5g/l Yeast extract and 5g/l NaCl).

Enfin, après une nuit d'incubation à 37 °C, les plages formées sont comptées, et le nombre de phages en pfu.mL<sup>-1</sup> est ainsi déterminé.

V.3.3 Détection acoustique du bactériophage

Comme pour le greffage de la couche sensible, nous pouvons suivre en temps réel la détection du bactériophage à l'oscillateur. Nous proposons dans cette partie d'analyser les réponses acoustiques obtenues, ainsi que la possibilité d'utiliser plusieurs fois la même couche sensible. Toutes les courbes présentées ici ont été corrigées mathématiquement, de manière à limiter l'influence de la température sur le signal.

V.3.3.a Réponse temps réel du capteur à la détection du bactériophage

Nous présentons sur la Figure V-6 un exemple typique de la réponse du capteur lors de la détection du bactériophage. Ainsi après les étapes de lavage, nous ajoutons 500  $\mu\text{L}$  de PBS et nous attendons la stabilisation du signal à environ  $1 \text{ Hz}\cdot\text{s}^{-1}$ , puis 100  $\mu\text{L}$  d'une solution de bactériophages à  $10^{12} \text{ pfu}\cdot\text{mL}^{-1}$  est injectée dans la cellule.

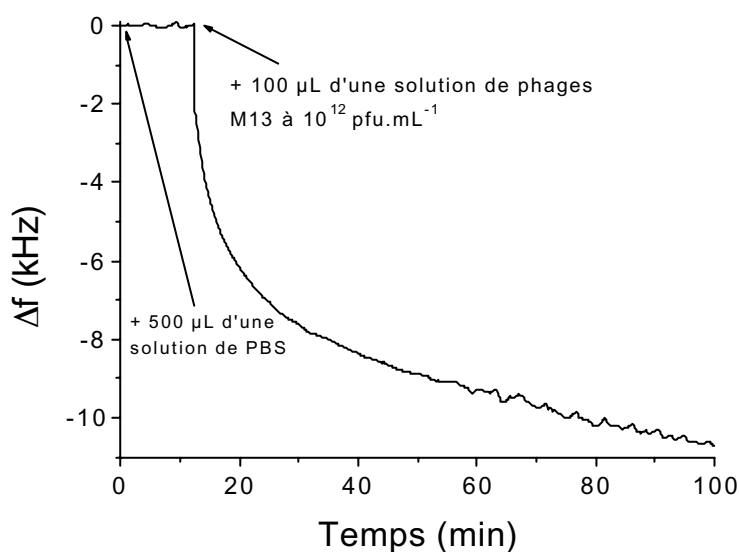


Figure V-6 : Réponse du capteur à la détection de bactériophages.

Cette réponse présente les trois domaines, particuliers communs à ce type d'expériences juste après l'introduction de la solution de bactériophages qui, dépendent de la cinétique de la réaction :

- Tout d'abord, comme pour le greffage de l'anti M13, nous observons une diminution très rapide de la fréquence (environ 10 secondes) qui est due à la variation des propriétés physiques de l'échantillon dans la cellule.
- Puis durant approximativement les 15 minutes suivantes, nous avons une variation rapide de la fréquence (environ  $-10 \text{ Hz}\cdot\text{s}^{-1}$ ), liée à l'accrochage rapide des bactériophages sur les multiples sites anti M13 accessibles et fonctionnels. Ainsi nous avons une grande accumulation de masse durant ces premières minutes.
- Enfin à partir de la quinzième minute environ nous observons une saturation progressive du signal ( $\approx -2 \text{ Hz}\cdot\text{s}^{-1}$ ) qui s'explique par le fait que la majorité des sites sont occupés par les bactériophages. L'accumulation de masse est alors moins importante que lors du début de la détection.

Afin de pouvoir comparer la réponse du capteur en fonction de différentes concentrations de bactériophages, nous nous intéressons au signal qui correspond à l'accumulation de masse, soit au second et au troisième domaines de la réponse du capteur. Ainsi nous ne tenons pas compte des effets des propriétés physiques des échantillons de solutions de bactériophages sur le signal (ces propriétés sont différentes selon les dilutions considérées).

Les courbes représentées sont corrigées en température afin de limiter l'effet des éventuelles dérives sur la fréquence de l'oscillateur.

Sur la Figure V-7 sont superposées les réponses du capteur pour différentes concentrations de bactériophages dans la cellule (en tenant compte du volume total de liquide), avec en particulier un zoom sur les 15 premières minutes de détection.

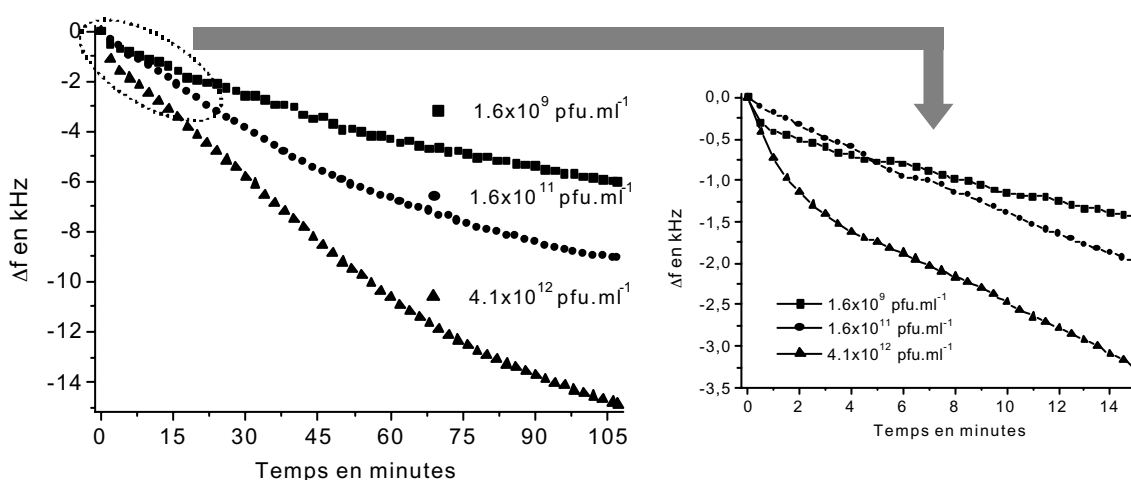


Figure V-7 : Réponse du capteur en fonction de la concentration de phage.

Les résultats obtenus montrent une réponse du capteur croissante avec la concentration de bactériophages. Cependant, nous remarquons sur le zoom que durant les premières minutes de détection, une solution A ayant une concentration en bactériophage moins élevée qu'une solution B, peut avoir une cinétique de réaction plus rapide dans les premières minutes.

Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que les conditions de tests (température, paramètres physiques des échantillons, etc...) concernant cette étude de faisabilité, ne sont pas strictement identiques d'une expérience à une autre. Dans certains cas, la rapidité de l'accrochage du phage pourrait être privilégiée.

Par ailleurs, une deuxième utilisation de la couche sensible d'anticorps, après élution des phages, afin d'effectuer une détection supplémentaire a été tentée sans succès. En effet nous n'observons pas de signal acoustique significatif pour des quantités de phages injectés similaires aux expériences précédentes.

Dans la plupart des applications biocapteur, les dispositifs sont utilisés pour une mesure unique, aussi nous n'avons pas poussé plus loin à ce stade les investigations permettant de réaliser un capteur réutilisable.

### V.3.3.b Comparaison avec la réponse de QCM

Nous pouvons comparer ces résultats avec des travaux similaires réalisés en 2001 par Uttenthaler *et al.* qui utilisent des microbalances à quartz ou QCM [V-5]. Ces derniers détectent des bactériophages M13, en analysant le signal obtenu après 10 min en fonction de la concentration injectée dans la cellule. Les meilleures performances obtenues sont celles utilisant un dispositif QCM très haute fréquence (70 MHz) : ils obtiennent ainsi une variation de fréquence  $-410$  Hz en 10 minutes ( $-7$  ppm en variation relative de fréquence) pour une concentration de bactériophages M13 de  $10^9$  pfu.mL<sup>-1</sup>.

Sur la Figure V-7, pour la plus petite concentration de phage injectée ( $1,6 \cdot 10^9$  pfu.mL<sup>-1</sup>), nous observons avec le dispositif à ondes de Love une variation de la fréquence d'oscillation du capteur de  $-1,15$  kHz environ après 10 minutes et  $-6$  kHz après deux heures (ce qui correspond respectivement à une variation de fréquence relative de  $-14$  ppm, et de  $-69$  ppm). Ainsi les premiers essais de détection avec le dispositif à ondes de Love montrent une variation relative de fréquence supérieure au bout de 10 minutes à celle obtenue avec ce dispositif à ondes de volume haute fréquence. De plus, le dispositif à ondes de Love est loin de la saturation au bout de 10 min, contrairement aux QCM. Un temps d'intégration plus

long, ou un traitement du signal adapté pour prendre en compte la dynamique de la réponse, permettront d'améliorer considérablement ce résultat.

Enfin, comme nous le verrons dans le paragraphe V.4.2, l'optimisation de plusieurs paramètres (fréquence de fonctionnement, matériaux utilisés...) permettront d'améliorer sensiblement la sensibilité actuelle pour des études futures. De même, ces améliorations, ainsi que celles du banc de test, permettront d'augmenter les performances du capteur.

### V.3.3.c Réponse du capteur à l'accumulation de masse

Afin d'analyser les performances du capteur en terme d'effet de masse, nous présentons sur la Figure V-8 la variation de fréquence obtenue pour les deux derniers domaines d'une réponse à la détection en fonction de la masse de bactériophage estimée après élution et titration. Pour les calculs, nous considérons qu'un pfu titré représente un phage.

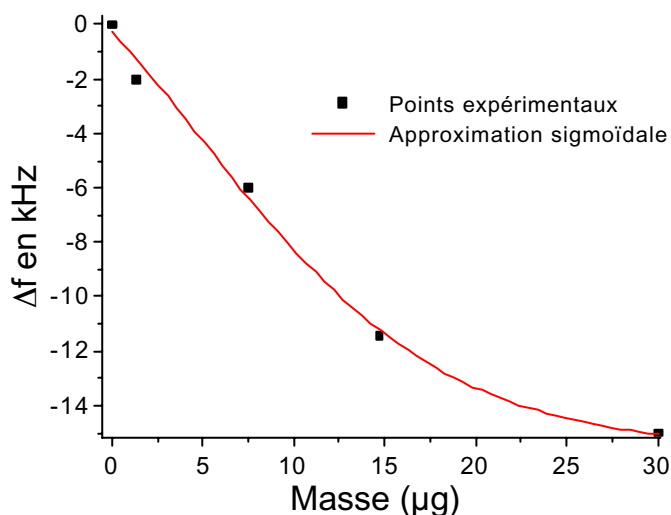


Figure V-8 : Variation de fréquence du capteur en fonction de la masse de bactériophage titrée (1 pfu = 1 phage).

Sur cette figure, une approximation sigmoïdale permet d'estimer la réponse du capteur sur une gamme de masse accumulée allant de 0 à 30 μg. Nous observons une réponse quasi linéaire pour les masses allant de 0 à 15 μg environ, compatible avec la prise en compte d'un effet de masse pur. De 15 μg à 30 μg une saturation du signal apparaît, qui peut être liée à une saturation des sites disponibles du biocapteur, et/ou, comme cela semble se produire dans le cas des détections en milieu gazeux (cf. § III.3.2.e), à des effets venant se superposer de façon non négligeable à l'effet de masse pur, par exemple une modification du caractère visqueux

de la couche sensible. A ce stade, il est difficile d'aller plus avant dans la vérification de ces hypothèses.

#### V.3.3.d Etude de la sensibilité du capteur

Nous nous proposons dans ce paragraphe d'utiliser la partie linéaire de la courbe précédente pour estimer la sensibilité expérimentale. Cela nous permettra par la suite d'estimer le seuil de détection de notre dispositif.

Dans le paragraphe III.3.2.a, nous avons exprimé la sensibilité gravimétrique du capteur en fonction de la variation de vitesse relative, cf. équation (III-1).

Pour faire le lien avec les variations de fréquence relatives obtenues expérimentalement, nous utilisons la relation (I-8). Nous avons donc :

$$S_{mf} = \frac{A}{\Delta m} \frac{\Delta f}{f} \quad \text{et} \quad S_{mf} = \frac{V_g}{V_p} S_{mv}$$

Les phages titrés étant immobilisés sur toute la surface de la cellule soit environ 121 mm<sup>2</sup>, nous pouvons estimer la densité de masse accumulée comprise entre 11 ng.mm<sup>-2</sup> pour le plus petit signal observé (-2 kHz), et 250 ng.mm<sup>-2</sup> pour la plus grande variation de fréquence (-15 kHz).

En utilisant la relation précédente nous estimons une sensibilité de la vitesse à l'effet de masse expérimentale de l'ordre de 1 m<sup>2</sup>.kg<sup>-1</sup>. Cette valeur peut être comparée avec la valeur théorique de 18 m<sup>2</sup>.kg<sup>-1</sup>, calculée en considérant une couche sensible homogène de polymère et en supposant un effet de masse pur, modélisé par une augmentation de la masse volumique de la couche sensible.

La différence observée peut être liée à plusieurs phénomènes. Tout d'abord, il est clair que notre couche sensible d'anticorps n'est pas organisée comme une couche solide homogène. Selon l'entraînement effectif de ces anticorps au passage de l'onde, les paramètres considérés devront au moins être adaptés, voire le modèle lui même remis en cause.

De plus la modélisation de l'effet de masse utilisée lors de l'absorption de gaz par le polymère reflète moins bien l'accrochage du bactériophage M13, qui se superpose sur la couche sensible, comme une couche supplémentaire en surface du dispositif.

De nombreuses études théoriques et expérimentales, confrontées à des études sur la morphologie des couches déposées, seraient nécessaires afin d'adapter le modèle théorique utilisé en milieu gazeux au cas des milieux liquides. Cela permettrait de déterminer des paramètres physiques équivalents de la couche sensible d'anticorps (masse volumique,

module de rigidité transverse, épaisseur, etc...), puis éventuellement de la couche de bactériophages, à moins de devoir adapter le modèle lui-même, si ces dépôts ne peuvent être considérés comme homogènes vis-à-vis de l'onde acoustique.

### V.3.3.e Estimation du seuil de détection du dispositif

A partir de la sensibilité expérimentale du dispositif, nous pouvons estimer son seuil de détection.

Compte tenu des conditions de manipulation, la résolution de notre capteur est essentiellement limitée par les perturbations dues aux différences entre les paramètres physiques du solvant et ceux de la solution contenant le polluant, ainsi qu'aux variations de température à court terme dues à l'injection du polluant, et à plus long terme sur la durée de l'immobilisation du bactériophage.

Ainsi nous estimons de l'ordre de 1,5 kHz la variation minimale de fréquence que l'on peut détecter attribuable à l'accumulation de masse. La plus petite densité de masse détectable serait alors de l'ordre de la dizaine de  $\text{ng}\cdot\text{mm}^{-2}$ .

Cependant, en améliorant les conditions de manipulation (cf. § V.4), nous pouvons envisager de descendre à une variation minimale de fréquence significative inférieure à 100 Hz. Avec le dispositif de test, cela permettrait d'obtenir un seuil de détection en densité surfacique de masse proche de  $1\text{ ng}\cdot\text{mm}^{-2}$ , encore améliorable en augmentant la sensibilité du capteur (cf. V.4.2.a).

Nous proposons d'explorer dans la partie suivante différentes possibilités d'amélioration de ce prototype de capteur, en adaptant la conception de la ligne à retard, ainsi que la cellule et la méthode de mesure.

## ***V.4 Discussion, amélioration des détections***

### *V.4.1 Problèmes rencontrés lors des détections*

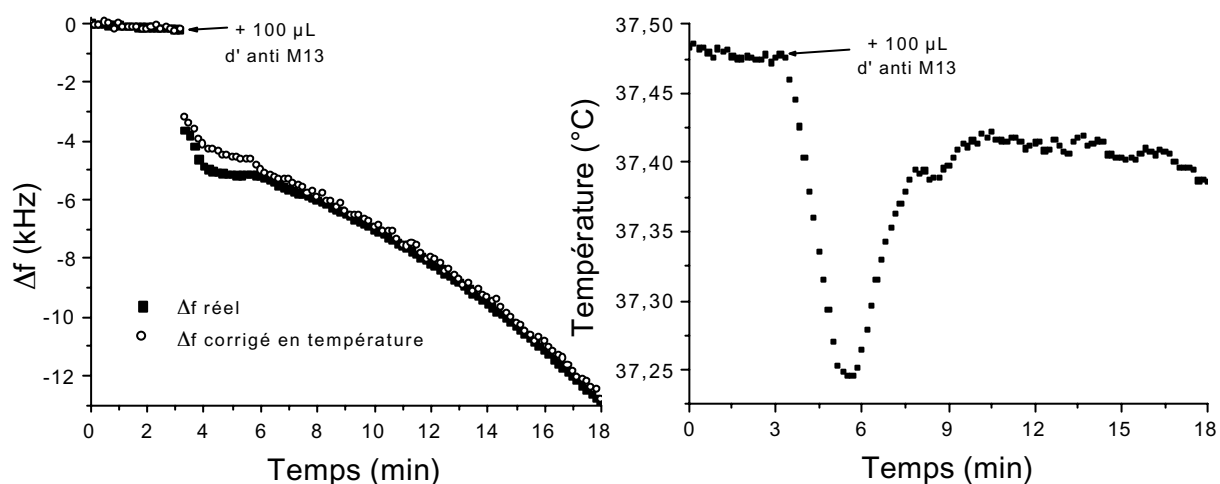
#### V.4.1.a Conductivité électrique du liquide

Les milieux biologiques étant électriquement conducteurs, il est nécessaire pour les applications de détections d'introduire en entrée et en sortie de la ligne à retard un transformateur de gain unitaire pour un fonctionnement en différentiel, comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe IV.1.4.

## V.4.1.b Influence de la température

Le dispositif que nous utilisons a un coefficient de température très élevé, de  $3,6 \text{ kHz} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ . De multiples précautions ont été prises afin d'avoir le moins de variations possible. Il est très difficile de stabiliser la température lors de l'ajout d'une solution. Par exemple les différentes solutions, ainsi que les embouts de pipettes sont gardés à l'étuve à  $37^\circ\text{C}$ . Cependant le fait de prélever de faibles volumes de solution durant quelques secondes à quelques dizaines de secondes suffit à abaisser la température suffisamment pour provoquer une variation non négligeable lors de l'injection dans la cellule (cf. Figure V-9 b).

Sur la Figure V-9 nous pouvons voir l'influence de la température sur la réponse du capteur lors du greffage de l'anticorps.



a) Réponse réelle et corrigée en température.

b) Température du système.

Figure V-9 : Influence de la température sur la réponse du capteur lors de l'injection d'anticorps dans la cellule.

La brusque diminution de température due à l'introduction de l'anti M13 dans la solution de départ de PBS (environ  $0,25^\circ\text{C}$ , cf. Figure V-9 b), apporte une contribution à la variation de la fréquence. Puis, avant de se stabiliser à une valeur d'équilibre proche de la valeur initiale, la température augmente d'environ  $0,2^\circ\text{C}$ . Cela contribue à une augmentation de la fréquence qui s'oppose à la diminution liée à l'effet de masse dû au greffage de l'anticorps. Il en résulte alors une stabilisation de la fréquence (cf. Figure V-9 a,  $\Delta f$  réel) durant deux minutes environ.

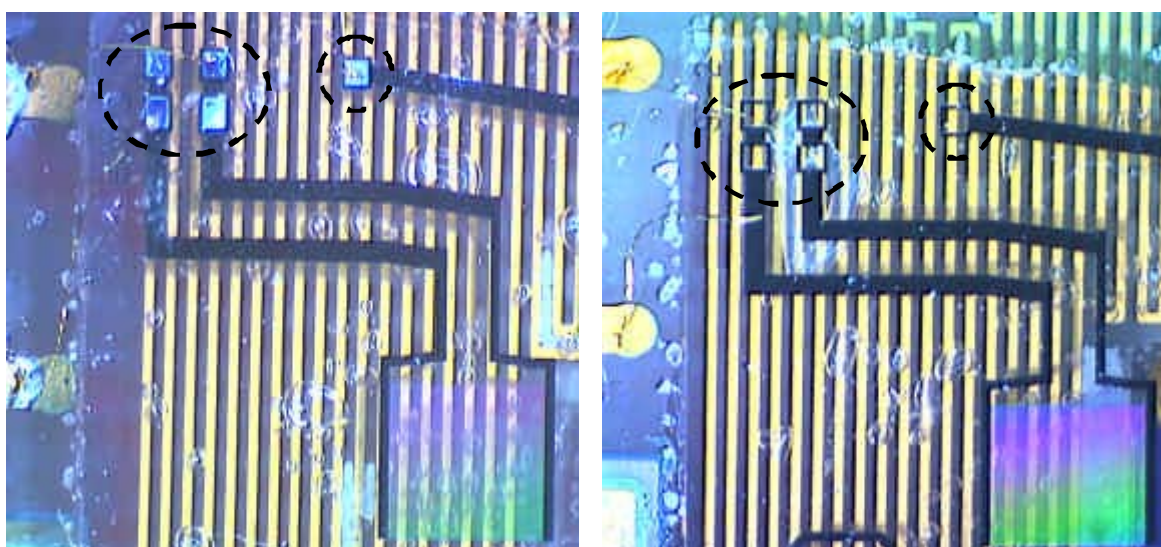


Sur la Figure V-9 a, une correction du signal permet de s'affranchir en partie de cet effet de température. Une légère inflexion du signal est encore visible : elle est liée à la mesure même de la température. En effet, le capteur étant placé sous le quartz, de conductivité thermique assez faible, les variations rapides de température en surface de la ligne à retard sont un peu sous estimées. De plus, dans les corrections en température du signal, l'influence de la température sur les paramètres physiques de la solution n'est pas prise en compte.

Bien qu'une correction mathématique de l'influence de la température sur la réponse du capteur peut être réalisé, il est plus efficace de s'affranchir expérimentalement de ce paramètre en utilisant un capteur en configuration différentielle (cf. § V.4.2.b).

#### V.4.1.c Salinité du liquide

Le problème le plus critique lors des détections est la corrosion des plots, et éventuellement des connexions, en aluminium. En effet, lors d'une expérience complète (dépôt de couche sensible / détection), le dispositif reste en contact avec des solutions très salées de PBS durant deux jours et une nuit. La répétition de ces protocoles montre une corrosion électrochimique de l'aluminium à nu (cf. Photographie V-1). Cet effet est renforcé par le confinement du dispositif dans le bain thermostaté à sec, favorisant notamment les phénomènes de vapeurs et de condensation.



a) Plots intacts

b) Plots dégradés

Photographie V-1 : Corrosion électrochimique de l'aluminium par les solutions salées.

Cet effet peut être limité avec les dispositifs et les conditions de manipulations actuelles, en nettoyant régulièrement le dispositif complet. Des améliorations technologiques ont aussi été mises en œuvre (cf. V.4.2.a).

Remarque : les « bulles » qui sont visibles par transparence sur la Photographie V-1 sont des inhomogénéités dans le silicone (RTV 3145 de Dow Corning) qui permet de fixer la ligne à retard sur le circuit imprimé.

### *V.4.2 Améliorations du système*

L'ensemble de ces premières études expérimentales de caractérisation et de détection ont mis en évidence des points critiques notamment concernant la robustesse de la ligne à retard pour des utilisations en milieu salin. Ceci a permis de réfléchir à des possibilités d'amélioration du système (robustesse, sensibilité à l'effet de masse, résolution de mesure) dont nous présentons ici les principaux éléments.

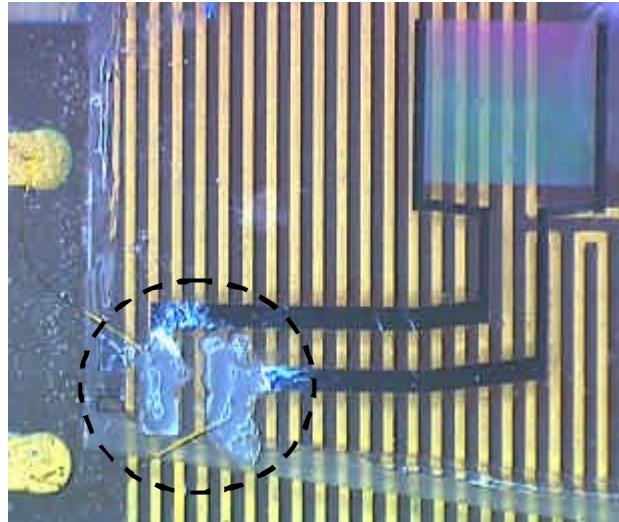
#### V.4.2.a Amélioration de la ligne à retard

Afin d'améliorer la ligne à retard pour les détections, nous travaillons sur deux aspects.

Tout d'abord la robustesse du dispositif peut être améliorée en utilisant des matériaux inoxydables.

Avec nos dispositifs, nous avons pu limiter fortement les phénomènes de corrosion en réalisant des câblages en fil d'or pour les connexions ligne à retard / PCB. Puis la surface des plots en aluminium ainsi que la base du câblage (« ball bonding ») en or sont enrobés de silicone (RTV 3145 de Dow Corning) comme le montre la Photographie V-2.

Cependant cette protection mécanique par le silicone pourrait être évitée en réalisant les électrodes de la ligne à retard avec des matériaux inoxydables, typiquement de l'or avec une couche d'accrochage de chrome, ou au moins en protégeant les plots de contact aluminium avec un matériau inoxydable ( finition or).



Photographie V-2 : Protection des connexions en aluminium par le silicone.

En plus de la robustesse du dispositif, nous pouvons améliorer les performances de la ligne à retard en termes de sensibilité à la température, à diminuer, et de sensibilité et à l'effet de masse, à augmenter.

Afin de limiter l'influence de la température sur les caractéristiques de propagation de l'onde de Love, nous pouvons utiliser un substrat de quartz sur coupe AT (0, 121°, 90) avec une épaisseur de SiO<sub>2</sub> appropriée. Un tel dispositif, nu, présente le double avantage d'avoir un VFT nul pour une sensibilité gravimétrique maximale [V-2].

De plus, la Figure III-13 montre qu'il est possible de multiplier la sensibilité gravimétrique de plusieurs unités en réduisant la longueur d'onde et en utilisant l'épaisseur de SiO<sub>2</sub> appropriée. De telles périodicités spatiales, bien que complexes à réaliser technologiquement, ont été publiées dans la littérature, et les résonateurs à ondes de surface commercialisés ont communément aujourd'hui des électrodes de largeur inférieures à 1 μm. Ce type de longueur d'onde impose des fréquences d'oscillation de l'ordre de 300 MHz ou plus. Une grande attention doit alors être apportée au choix de l'électronique qui permet de réaliser la chaîne d'oscillation.

Josse *et al.* proposent d'utiliser un substrat de LiTaO<sub>3</sub> et une couche guidante de PMMA afin d'améliorer la sensibilité à l'effet de masse. Le seuil de détection estimé théoriquement (variation de fréquence minimale correspondant à 3 fois le bruit crête à crête de la ligne de base de l'oscillateur) est de 17 pg.mm<sup>-2</sup> (dispositif oscillant à ≈ 107 MHz). De plus l'avantage

de l'utilisation de ces matériaux est de pouvoir négliger l'influence de la permittivité électrique des liquides de test au-dessus des électrodes interdigitées [V-3].

### V.4.2.b Utilisation en mode différentiel

Afin d'améliorer la résolution du capteur, une utilisation en mode différentiel des lignes à retard est envisageable. Une première ligne (ligne sensible) est sensible et sélective à l'espèce que l'on souhaite détecter, ainsi qu'aux variations non spécifiques. La seconde ligne (ligne de référence) est sensible aux variations des paramètres non spécifiques. La différence des deux signaux nous donne alors la réponse spécifique seule (due à la détection).

La méthode consiste à greffer sur le « chemin acoustique » de la ligne sensible la couche sensible et sélective à l'espèce que l'on souhaite détecter, puis à saturer la ligne de référence avec un matériau bloquant non sélectif vis-à-vis de cette espèce. Josse *et al.* utilisent de la BSA [V-3]. Harding *et al.* utilisent deux anticorps différents, celui qui est sélectif à l'antigène à détecter est greffé sur la ligne sensible [V-4].

### V.4.2.c Amélioration du banc de test

Afin de minimiser l'influence des différentes actions du protocole de test sur les caractéristiques de propagation, et/ou avoir des protocoles les plus reproductibles possible, une cellule permettant l'injection en flux continu et automatisée de solutions de test sur la surface du capteur peut être réalisée. Ainsi la résolution du capteur pourrait être améliorée. Un exemple de cellule en flux continu proposée par Uttenthaler *et al.* [V-5] est présenté sur la Figure V-10.

Les deux principaux organes de ce système d'injection en flux continu sont la pompe péristaltique, et la valve d'injection.

La pompe péristaltique présente le double avantage d'entraîner d'une part le solvant dans le circuit fluidique sans contact entre celui-ci et le milieu extérieur, et d'autre part d'être adaptée à une grande échelle de débit (typiquement quelques dixièmes de microlitres à plusieurs litres par minutes).

La valve d'injection permet d'introduire une solution de test dans le circuit fluidique en contrôlant de manière précise le temps d'injection. L'homogénéisation entre le solvant et la

solution de test s'effectue en amont du capteur, ainsi les problèmes de mesure dus à l'injection d'échantillons liquides dans un solvant directement sur le capteur sont limités.

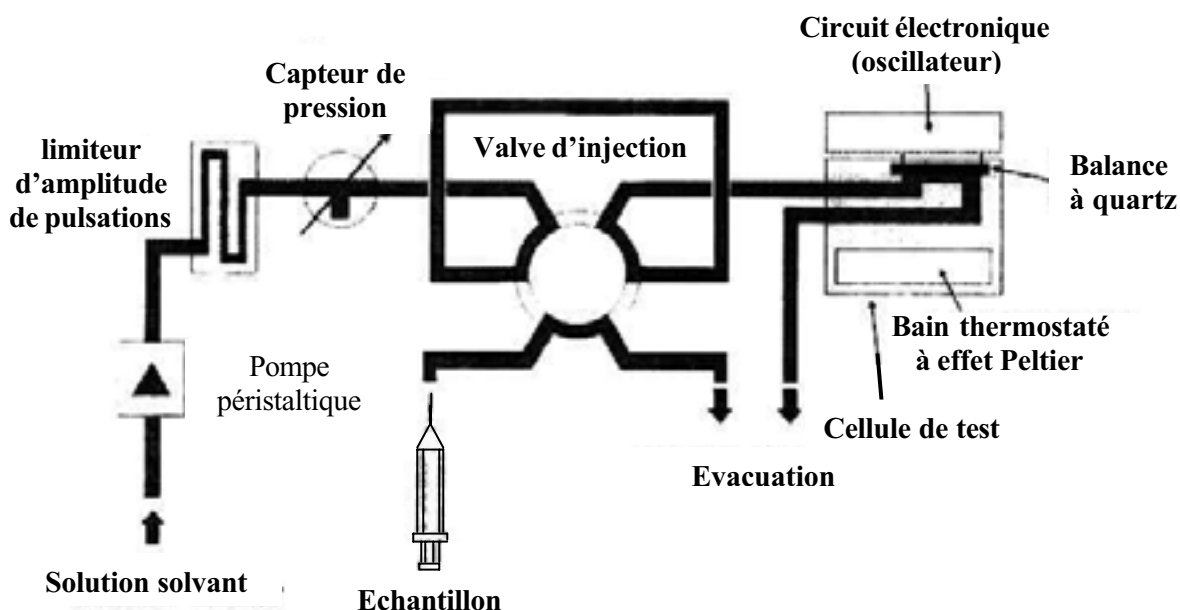


Figure V-10 : Système d'injection de liquide à flux continu proposé par Uttenthaler *et al.*

Tous les éléments intégrant ce système de mesure en flux continu sont contrôlables par informatique, ainsi des procédures automatisées sont envisageables, ce qui améliorerait la reproductibilité des protocoles de mesures.

### V.5 Conclusion.

Les premières expériences de détection réalisées, et présentées dans ce chapitre, ont donné des résultats très prometteurs.

En effet, une fois surmontées les principales difficultés technologiques (fonctionnement en milieu salin, sensibilité à l'injection d'échantillons liquides), nous avons pu obtenir des résultats significatifs concernant le greffage d'une couche sensible d'anticorps, ainsi que l'immobilisation d'un bactériophage. Ainsi, nous avons pu montrer les potentialités des dispositifs à ondes de Love pour réaliser des détections en milieu liquide en utilisant un modèle immunologique (réaction anticorps / bactériophages) susceptible d'être adapté à une grande variété d'applications.

De plus nous avons proposé des possibilités d'amélioration des dispositifs à ondes de Love (robustesse, sensibilité gravimétrique, résolution) et de leur mise en œuvre (montage différentiel, banc de test), qui nécessiteront des études technologiques et théoriques complémentaires. Ces améliorations permettront aussi d'affiner la modélisation et les paramètres théoriques portant sur la couche sensible et l'espèce détectée dans le cas d'une application en milieu liquide.

CONCLUSION





Cette étude qui s'inscrit dans la continuité des recherches du groupe « Capteur Microsystèmes » du laboratoire IXL, a permis de montrer des résultats très significatifs concernant les détections de biomolécules en milieu liquide. Ces travaux présentent une bonne base de départ afin de développer des systèmes de mesures utilisant des ondes acoustiques temps réel et *in situ*.

Nous avons tout d'abord présenté un état de l'art des capteurs acoustiques en milieu liquide, avec en particulier différentes applications utilisant des ondes de Love, tant en caractérisation de milieu liquide, qu'en détection. Ceci nous a permis de comparer la sensibilité des dispositifs à ondes de Love par rapport aux autres dispositifs à ondes acoustiques utilisés en milieu liquide afin de justifier ce choix pour nos études.

Puis, deux résolutions analytiques et numériques à partir d'un modèle théorique multicouche ont été proposées.

La résolution analytique proposée présente une contribution théorique supplémentaire dans le domaine des capteurs acoustiques à ondes de Love. Elle permet d'estimer rapidement et assez simplement l'influence des paramètres mécaniques du système sur la vitesse de phase de l'onde de Love.

La résolution numérique plus complète mais plus longue permet de prendre en compte l'influence de plus de paramètres, notamment les variables électriques du liquide et du capteur.

Les principaux résultats obtenus ont notamment montré une très grande sensibilité des lignes à retard à ondes de Love aux paramètres mécaniques du liquide (en particulier sa viscosité en régime newtonien), par rapport aux paramètres électriques de ce dernier.

Dans le cas d'une configuration capteur (ligne à retard + couche sensible de polymère), l'effet de masse qui représente le mécanisme de détection prédominant lors des détections a été modélisé par une légère augmentation de la masse volumique de la couche sensible.

Ainsi plusieurs résultats intéressants apparaissent :

- L'augmentation de la viscosité du liquide de test assimilé comme étant newtonien, améliore la sensibilité gravimétrique du capteur, mais aux dépens des pertes d'insertion.

- Comme en milieu gazeux, une diminution du module de rigidité transverse, ainsi qu'une augmentation de la masse volumique de la couche sensible améliorent également la sensibilité à l'effet de masse.
- Enfin et surtout, il est possible d'augmenter fortement la sensibilité gravimétrique du capteur de plusieurs unités en réduisant la longueur d'onde de la ligne à retard et en utilisant une épaisseur de  $\text{SiO}_2$  appropriée.

Lors des premières investigations expérimentales, nous avons conçu et réalisé une ligne à retard à ondes de Love, une cellule de test, un banc de test, ainsi qu'un logiciel informatique de contrôle et d'acquisition temps réel des mesures.

Les expériences de caractérisations en milieu liquide visqueux ont montré une bonne adéquation entre les résultats obtenus et les modélisations théoriques.

Cependant, en ce qui concerne les milieux de test électriquement conducteurs, la faible épaisseur de la couche guidante de  $\text{SiO}_2$  ( $\approx 6 \mu\text{m}$ ) impose des couplages électriques non négligeables entre les électrodes interdigitées et le milieu de test.

D'un point de vue expérimental, il est alors indispensable d'utiliser la ligne à retard en mode différentiel, à l'aide de transformateurs à point milieu. D'un point de vue théorique le modèle rend compte uniquement de la propagation de l'onde dans une structure multicouche, sans tenir compte des effets au niveau des transducteurs. Aussi les résultats obtenus concernant l'influence des paramètres électriques sont sous-estimés par rapport aux résultats expérimentaux.

Néanmoins, l'influence des paramètres mécaniques reste sensiblement plus importante que celle des paramètres électriques.

Afin de montrer la faisabilité des expériences de détections utilisant les dispositifs à ondes de Love, un modèle biologique antigène / anticorps a été proposé. Un anticorps monoclonal de souris qui sert de couche sensible permet de constituer le biocapteur, puis un bactériophage M13 spécifique à la couche sensible représente le « polluant ». Une acquisition temps réel témoigne alors des deux opérations, le greffage de la couche sensible sur la surface du  $\text{SiO}_2$ , et la détection du bactériophage. Une diminution progressive de la fréquence, fonction de la cinétique d'immobilisation du bactériophage est observée. Elle permet de conclure sur la faisabilité des opérations de détection en milieu liquide.

Cette thèse qui présente les premiers travaux de détection en milieu liquide réalisés au sein de l'équipe « Capteurs Microsystèmes » du laboratoire IXL montre des résultats très encourageants et très prometteurs. Nous pouvons d'ores et déjà dire que les capteurs acoustiques à onde de Love présentent une bonne alternative aux méthodes classiques de mesures en milieu liquide (chromatographie, spectrométrie de masse).

Cependant, des études supplémentaires aussi bien théoriques qu'expérimentales seront nécessaires afin d'améliorer les modèles théoriques, les méthodes de mesures et les caractéristiques, notamment la sensibilité à l'effet de masse des dispositifs à ondes de Love. Des propositions d'amélioration ont été présentées. Le caractère générique de ce dispositif, adaptable à une molécule cible donnée en choisissant une couche sensible adaptée, permet d'envisager un vaste champ d'applications. La détection rapide et in-situ de toxines ou autres espèces biologiques intéresse en effet des domaines variés, que ce soit dans le médical, l'environnement ou l'agro-alimentaire.



**ANNEXES**



**Annexe A.**  
**Les ondes acoustiques utilisées pour des applications  
capteurs**





Dans le premier chapitre nous avons exposé diverses applications utilisant des dispositifs à ondes de Love. Nous avons ainsi montré que ce type d'onde a une très bonne sensibilité à la détection, et est adapté pour des utilisations en milieu liquide.

Cependant, d'autres types d'ondes acoustiques montées en ligne à retard peuvent être générées et appliquées à des opérations en milieux gazeux et liquide. Nous présentons dans cette annexe les principales ondes utilisées dans la littérature.

Les ondes de Love combinent la plupart des avantages de ces dispositifs.

### **A.1. Les ondes de surface**

#### *A.1.1. Les ondes de Rayleigh*

Ces ondes ont une polarisation elliptique dans un plan proche du plan sagittal (plan perpendiculaire à la surface du substrat). Les déplacements acoustiques résultent de la superposition d'une composante longitudinale (ou quasi-longitudinale) et d'une composante transverse verticale (ou quasi-transverse verticale) déphasées de  $\pi/2$ . La profondeur de pénétration de l'onde dans le substrat est de l'ordre de  $2\lambda$  (cf. Figure A-1).

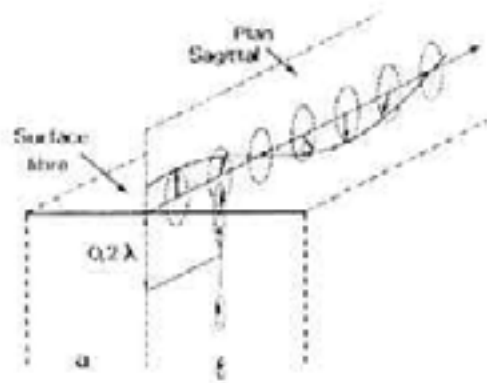


Figure A-1 : Polarisation et profondeur de pénétration de l'onde de Rayleigh.

Beaucoup de travaux ont été effectués sur ces ondes dans le cas des applications de détection en milieu gazeux [A-1], mais également pour la réalisation de filtres haute fréquence pour les télécommunications [A-2]. Ce sont largement les plus connues et les plus utilisées à ce jour, et le terme commun Ondes Acoustiques de Surface (Surface Acoustic Wave, ou SAW) y fait référence en général.

En revanche, l'utilisation de ce type de polarisation pour des applications en milieu liquide se révèle très difficile, voire impossible, à cause de pertes trop importantes d'énergie acoustique dans le liquide du fait de la composante verticale de la polarisation.

### A.1.2. Les ondes de Bleustein Gulyaev

Contrairement aux ondes de Rayleigh, les ondes de Bleustein Gulyaev ont une polarisation transverse horizontale (T.H.). Elles se propagent à la surface de matériaux fortement piézoélectriques. La longueur de pénétration de cette onde est de l'ordre de  $100\lambda$ .

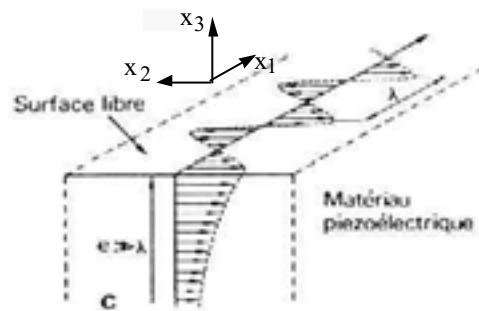


Figure A-2 : Polarisation et profondeur de pénétration de l'onde de Bleustein Gulyaev.

Les ondes de Bleustein Gulyaev également appelées Shear Horizontal Surface Acoustic Waves (ou SH-SAW) ont été utilisées par Kondoh et Shiokawa pour la détermination de conductivité et de pH en milieu liquide, et notamment la reconnaissance de jus de fruits [A-3]. La profondeur de pénétration de l'onde dans le matériau piézoélectrique est très grande comparée aux ondes de Love. On s'attend donc à des sensibilités gravimétriques plus faibles du fait de la plus faible densité d'énergie au voisinage de la surface libre.

## A.2. Les ondes de plaques

### A.2.1. Les ondes transverses horizontales à mode de plaque (SH-APM).

Les ondes de plaque transverses horizontales, ou « Shear horizontal acoustic plate mode » (SH-APM) en anglais sont apparues après les ondes de surfaces. Ce type de dispositif permet de guider une onde acoustique de polarisation transverse horizontale dans des matériaux

piézoélectriques volumiques limités par deux plans parfaitement parallèles. Typiquement, l'épaisseur de la plaque est de l'ordre de plusieurs centaines de micromètres (cf. Figure A-3). Il s'agit d'un dispositif multimode, l'ordre du mode correspondant au nombre de nœuds du déplacement dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation  $x_1$ .

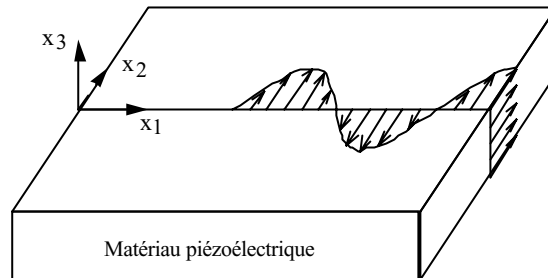


Figure A-3 : Polarisation d'une onde T.H. à mode de plaque.

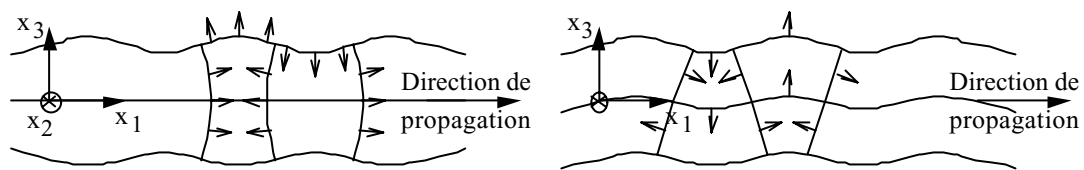
Les ondes SH-APM, ont été utilisées par plusieurs équipes de recherche pour effectuer de la caractérisation de paramètres physiques de liquides (viscosité, et conductivité électrique [A-4]). Des applications à la détection en milieu liquide [A-5] et en milieu gazeux [A-6] ont également été étudiées. Deux thèses ont été soutenues sur le sujet au sein de l'équipe capteur par Irène Esteban [A-6] et Corinne Déjous [A-7].

Ces études ont démontré en particulier une limite d'ordre technologique : pour atteindre une sensibilité comparable à celle des ondes de Rayleigh, il faudrait réaliser et ensuite manipuler des plaques avec deux surfaces parfaitement planes (poli optique) et parallèles, d'épaisseur de l'ordre de la longueur d'onde, par exemple  $50 \mu\text{m}$  seulement pour  $\lambda = 40 \mu\text{m}$ .

Par contre, ces dispositifs peuvent fonctionner en milieu liquide. De plus, les deux fonctions « génération de l'onde » et « détection chimique » peuvent être isolées, chacune sur l'une des faces du dispositif.

#### A.2.2. Les ondes de Lamb.

Comme les ondes de Rayleigh, les ondes de Lamb ont une polarisation quasi-elliptique qui résulte de la superposition de deux composantes de déplacement, l'une quasi-longitudinale et l'autre quasi-transverse verticale. Comme les ondes SH-APM, elles se propagent à des fréquences discrètes, dans des plaques fines appelées membranes. Selon le type de déplacement acoustique, on distingue des modes de Lamb symétriques et antisymétriques (cf. Figure A-4).



(a) : Mode de Lamb symétrique (S0)      (b) : Mode de Lamb antisymétrique (A0)

Figure A-4 : Déplacements acoustiques pour une onde de Lamb, d'après [A-8].

Malgré la composante verticale du déplacement, le mode A0 peut être utilisé en milieu liquide sans pertes excessive d'énergie, du fait d'une vitesse de propagation inférieure à celle de l'onde de volume dans le liquide [A-9].



**Annexe B.**  
**Analyse tensorielle**



**B.1. Analyse mécanique****B.1.1. Tenseur des contraintes**

Considérons un solide soumis à des actions extérieures. Dans le solide déformé apparaissent des tensions mécaniques appelées contraintes qui tendent à le ramener dans son état de repos, et assurent l'équilibre de la matière. Ces contraintes sont homogènes à une force par unité de surface.

Soit en repère orthonormé,  $\Delta F_i$  la composante sur l'axe  $i$  de la force  $\Delta \vec{F}$  exercée sur l'élément de surface  $\Delta S_j$  perpendiculaire à l'axe  $j$ . La contrainte  $T_{ij}$  est définie par la limite du rapport  $\Delta F_i / \Delta S_j$  quand  $\Delta S_j$  tend vers zéro :

$$T_{ij} = \lim_{\Delta S_j \rightarrow 0} \left( \frac{\Delta F_i}{\Delta S_j} \right) \quad i, j = 1, 2, 3 \quad (0-1)$$

Le tenseur des contraintes  $[T]$  est constitué de neuf composantes  $T_{ij}$  ( $i, j = 1, 2, 3$ ). Comme il s'agit d'un tenseur symétrique, c'est-à-dire que  $T_{ij} = T_{ji}$ , le nombre de composantes indépendantes est réduit à six [B-1] :

$T_{11}, T_{22}, T_{33}$  : contraintes normales aux faces.

$T_{12}, T_{13}, T_{23}$  : contraintes tangentielles.

**B.1.2. Tenseur des déformations**

- *Vecteur déplacement*

La position d'un point matériel d'un solide non déformé est définie, à partir d'une origine  $O$ , par le vecteur  $\vec{x}$ . Après déformation, le point choisi est repéré par le vecteur  $\vec{x}'$  tel que :

$$\vec{x}' = \vec{x} + \vec{U}$$

On appelle  $\vec{U}$  le vecteur déplacement.

- *Déformation*

Dans le cas d'un solide de forme quelconque soumis à des forces extérieures, il n'y a aucune raison pour que deux points, aussi voisins soient ils, se déplacent dans la même direction. Il apparaît des variations angulaires en plus des variations de longueur.

On peut montrer [B-1] que dans le cas d'un solide quelconque et pour de petites déformations, les composantes  $S_{ij}$  du tenseur des déformations [S] s'écrivent :

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) \quad i, j = 1, 2, 3 \quad (0-2)$$

[S] est un tenseur symétrique de rang deux :  $S_{ij} = S_{ji}$ .

### B.1.3. Relation entre contraintes et déformations

Pour déformer un solide, des actions extérieures sont nécessaires. Des tensions mécaniques apparaissent alors dans le solide, et tendent à le ramener dans son état de repos. Si le solide a un comportement élastique, il retrouve son état initial lorsque les actions extérieures sont supprimées. Ce comportement élastique se traduit par une relation entre les contraintes  $T_{ij}$  et les déformations  $S_{kl}$ , appelée loi de Hooke :

$$T_{ij} = \sum_{k,l} (C_{ijkl} S_{kl}) \quad i, j, k, l = 1, 2, 3$$

[C] : tenseur des rigidités élastiques ( $N.m^{-2}$ )

Dans la suite on adoptera la notation :

$$T_{ij} = C_{ijkl} S_{kl} \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (0-3)$$

Les tenseurs [T] et [S] étant symétriques on a :

$$C_{ijkl} = C_{jikl} \quad \text{et} \quad C_{ijkl} = C_{ijlk} \quad i, j, k, l = 1, 2, 3$$

De (B-2) et (B-3) il vient la relation entre les  $T_{ij}$  et les déplacements U :

$$T_{ij} = C_{ijkl} \frac{\partial U_l}{\partial x_k} \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (0-4)$$



Remarque :

Il est possible de considérer un solide n'ayant pas un comportement purement élastique. Si l'on souhaite tenir compte de la viscosité de l'un des matériaux le tenseur  $[C]$  sera remplacé par  $[C']$ , en connaissant le tenseur de viscosité  $[\eta]$  (cf. chapitre II).

$$\text{avec } C'_{ijkl} = C_{ijkl} + j \omega \eta_{ijkl} \quad i, j, k, l = 1, 2, 3$$

$[\eta]$  : tenseur de viscosité ( $\text{Pa}\cdot\text{s}^{-1}$ )

$\omega$  : pulsation angulaire ( $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$ )

### **B.2. Contraction des tenseurs**

Du fait des raisons de symétrie, le nombre de composantes des tenseurs utilisés peut être réduit.

Ainsi on posera :

$$C_{\alpha\beta} = C_{ijkl}$$

avec  $\alpha$  et  $\beta$  variant de 1 à 6 et correspondant respectivement à  $ij$  et  $kl$ , avec la notation :

$$\begin{aligned} (11) &\rightarrow 1 & (22) &\rightarrow 2 & (33) &\rightarrow 3 \\ (23) = (32) &\rightarrow 4 & (13) = (31) &\rightarrow 5 & (12) = (21) &\rightarrow 6 \end{aligned}$$

La loi de Hooke (B-3) s'écrira alors :

$$T_{\alpha} = C_{\alpha\beta} S_{\beta}$$

### **B.3. Analyse électroacoustique**

#### **B.3.1. Propriété piézo-électrique d'un solide**

La piézo-électricité est la propriété que possèdent certains corps de se polariser électriquement sous l'action d'une tension mécanique (effet direct) et de se déformer lorsqu'un champ électrique leur est appliqué (effet inverse).

Si un matériau piézo-électrique est soumis simultanément à un champ électrique (E) et à des déformations (S), la contrainte  $T_{ij}$  du matériau s'écrit :

$$T_{ij} = C_{ijkl} S_{kl} - e_{kij} E_k \quad i, j, k, l = 1,2,3 \quad (0-5)$$

[e] : tenseur de piézoélectricité ( $C.m^{-2}$ )

[E] : vecteur champ électrique ( $V.m^{-1}$ )

Le champ électrique E dérive d'un potentiel  $\varphi$  :

$$E_k = -\frac{\partial \varphi}{\partial x_k} \quad k = 1,2,3 \quad (0-6)$$

$\varphi$  : potentiel électrique (V)

En tenant compte des symétries on obtient :

$$T_{ij} = \frac{\partial}{\partial x_k} (C_{ijkl} U_l + e_{kij} \varphi) \quad i, j, k, l = 1,2,3 \quad (0-7)$$

### B.3.2. Induction électrique

Le comportement diélectrique d'un matériau est caractérisé par la relation :

$$D_j = \varepsilon_{jk} E_k \quad j, k = 1,2,3 \quad (0-8)$$

[D] : vecteur déplacement électrique (ou induction électrique) ( $C.m^{-2}$ )

[ $\varepsilon$ ] : tenseur de permittivité diélectrique ( $F.m^{-1}$ )

Certains diélectriques sont aussi polarisables par déformations imposées :

$$D_j = \varepsilon_{jk} E_k + e_{jkl} S_{kl} \quad j, k, l = 1,2,3 \quad (0-9)$$

**B.4. Calcul d'un paramètre en fonction de la coupe cristallographique du substrat**

Les données tensorielles mécaniques et électriques concernant les matériaux anisotropes, donc en particulier le quartz, ont des valeurs différentes en fonction de la direction considérée. Ainsi dans notre cas, l'orientation cristallographique du substrat (angle de coupe et direction de propagation) sera exprimée par les angles d'Euler,  $(\varphi, \theta, \psi)$ . Ces angles permettent d'effectuer un changement de repère à partir des axes cristallographiques pour connaître les caractéristiques de propagation dans le nouveau repère.

Soit  $[0, X, Y, Z]$  le repère cristallographique. L'utilisation des angles d'Euler consiste à faire les rotations suivantes (cf. Figure 0-1):

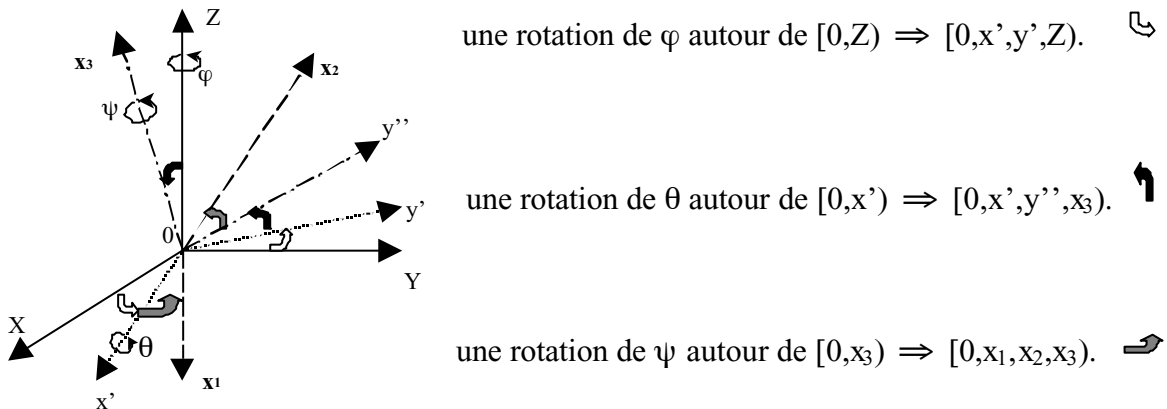


Figure 0-1 : Changement de repère cristallographique en fonction des angles d'Euler.

Dans nos simulations nous avons utilisé du quartz de coupe  $(0^\circ, \theta, 90^\circ)$ , qui permettent de générer des ondes transverses horizontales pures. Les valeurs des éléments des différents tenseurs sont déduits de celles dans le repère cristallographique, à partir des angles d'Euler, suivant les relations matricielles suivantes [B-2] :

$$[C'_{ij}] = Q [C_{ij}] Q^t \quad (\text{tenseur des contraintes})$$

$$[e'_{ij}] = R [e_{ij}] Q^t \quad (\text{tenseur des constantes piézoélectriques})$$

$$[\varepsilon'_{ij}] = R [\varepsilon_{ij}] R^t \quad (\text{tenseur des permittivités électriques})$$

avec

$$Q = \begin{bmatrix} 0 & \cos^2\theta & \sin^2\theta & 2\cos\theta\sin\theta & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sin^2\theta & \cos^2\theta & -2\cos\theta\sin\theta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\cos\theta & \sin\theta \\ 0 & -\sin\theta\cos\theta & \cos\theta\sin\theta & \cos^2\theta - \sin^2\theta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\sin\theta & -\cos\theta \end{bmatrix}$$

$$R = \begin{bmatrix} 0 & \cos\theta & \sin\theta \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & -\sin\theta & \cos\theta \end{bmatrix}$$

**Annexe C.**  
**Constantes caractéristiques des matériaux utilisés**



Les valeurs données ici sont caractéristiques des matériaux à température ambiante (25°C), sauf indication spécifique.

### C.1. Matériaux solides

#### C.1.1. Quartz [C-1]

- SiO<sub>2</sub>
- Système cristallographique : trigonal 32
- Masse volumique : 2650 kg.m<sup>-3</sup>
- Rigidités élastiques C<sub>ij</sub> :

$$[C] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & -C_{14} & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ C_{14} & -C_{14} & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & C_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{14} & \frac{C_{11} - C_{12}}{2} \end{bmatrix}$$

avec :

$$\begin{aligned} C_{11} &= 0,867 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)} & C_{14} &= -0,179 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)} \\ C_{12} &= 0,070 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)} & C_{33} &= 1,07 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)} \\ C_{13} &= 0,119 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)} & C_{44} &= 0,579 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)} \end{aligned}$$

- Permittivités électriques  $\epsilon_{ij}$  :

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$$

avec :

$$\epsilon_{11} = 3,92 \cdot 10^{-11} \text{ (F.m}^{-1}\text{)} \quad \epsilon_{33} = 4,1 \cdot 10^{-11} \text{ (F.m}^{-1}\text{)}$$

- Constantes piézoélectriques  $e_{ij}$  :

$$[e] = \begin{bmatrix} e_{11} & -e_{11} & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -e_{14} & -e_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

avec :

$$e_{11} = 0,171 \text{ (C.m}^{-2}\text{)} \quad e_{14} = -0,0406 \text{ (C.m}^{-2}\text{)}$$

C.1.2. *SiO<sub>2</sub> amorphe [C-1]*

- SiO<sub>2</sub>
- Matériau isotrope
- Masse volumique : 2203 kg.m<sup>-3</sup>
- Rigidités élastiques C<sub>ij</sub> :

$$[C] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{11} - 2C_{44} & C_{11} - 2C_{44} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} - 2C_{44} & C_{11} & C_{11} - 2C_{44} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} - 2C_{44} & C_{11} - 2C_{44} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{bmatrix}$$

avec :  $C_{11} = 0,785 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)}$      $C_{44} \text{ (ou } \mu) = 0,312 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)}$

- Permittivités électriques  $\varepsilon_{ij}$  :

$$[\varepsilon] = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{11} \end{bmatrix}$$

avec :  $\varepsilon_{11} = 3,32 \cdot 10^{-11} \text{ (F.m}^{-1}\text{)}$

C.1.3. *Aluminium [C-2]*

- Al
- Matériau isotrope
- Masse volumique : 2700 kg.m<sup>-3</sup>
- Rigidités élastiques C<sub>ij</sub> :

$$[C] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{11} - 2C_{44} & C_{11} - 2C_{44} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} - 2C_{44} & C_{11} & C_{11} - 2C_{44} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} - 2C_{44} & C_{11} - 2C_{44} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{bmatrix}$$

avec :  $C_{11} = 1,113 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)}$      $C_{44} \text{ (ou } \mu) = 0,261 \cdot 10^{11} \text{ (N.m}^{-2}\text{)}$



- Permittivités électriques  $\varepsilon_{ij}$  :

$$[\varepsilon] = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{11} \end{bmatrix}$$

avec :  $\varepsilon_{11} = 1.10^{-11}$  (F.m<sup>-1</sup>)

#### C.1.4. Polyméthylmétacrylate (PMMA) [C-3]

- Matériau isotrope
- Masse volumique : 1100 kg.m<sup>-3</sup>
- Rigidités élastiques  $C_{ij}$  :

$$[C] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{11}-2C_{44} & C_{11}-2C_{44} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11}-2C_{44} & C_{11} & C_{11}-2C_{44} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11}-2C_{44} & C_{11}-2C_{44} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{bmatrix}$$

avec :  $C_{11} = 0,068. 10^{11}$  (N.m<sup>-2</sup>)     $C_{44} = (\text{ou } \mu) 0,011.10^{11}$  (N.m<sup>-2</sup>)

- Permittivités électriques  $\varepsilon_{ij}$  :

$$[\varepsilon] = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{11} \end{bmatrix}$$

avec :  $\varepsilon_{11} = 2,6.10^{-11}$  (F.m<sup>-1</sup>)

## C.2. Matériaux liquides

### C.2.1. Eau pure

- H<sub>2</sub>O
- Matériau isotrope
- Masse volumique : 998,2 kg.m<sup>-3</sup>
- Viscosité 1,005 cP (10<sup>-3</sup> Pa.s)
- Permittivité électrique : 7,01.10<sup>-10</sup> (F.m<sup>-1</sup>). Soit 80  $\varepsilon_0$

Annexe C : Constantes caractéristiques des matériaux utilisés

C.2.2. Solutions aqueuses de glycérol [C-4]

La viscosité des solutions en général s'exprime en poise (P), cependant, l'unité S.I. est le poiseuille (Pl) qui est équivalente au Pa.s<sup>-1</sup>.

Les relations suivantes permettent les correspondances entre ces différentes unités :

$$1 \text{ Pl} = 1 \text{ Pa.s} \quad 1 \text{ P} = 0,1 \text{ Pa.s} \quad 1 \text{ cP} = 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

Les solutions aqueuses de glycérol peuvent constituer des étalons pour le calibrage des viscosimètres. En se rapportant au tableau ci-dessous, établi d'après les données de M.L. Sheeley (Ind. Eng. Chem. 24. 1660, 1932) et de Bosart et Snoddy (Ind. Eng. Chem. 20. 1377, 1928), on déterminera la viscosité de la solution de référence par une mesure de masse spécifique.

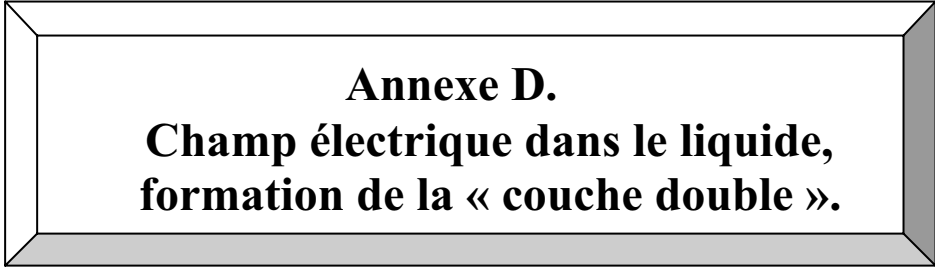
% de glycérol	masse spécifique à 20 °C g/cm <sup>3</sup>	viscosité absolue en centipoises			% de glycérol	masse spécifique à 20 °C g/cm <sup>3</sup>	viscosité absolue en centipoises		
		20 °C	25 °C	30 °C			20 °C	25 °C	30 °C
0,00	0,998 23	1,005	0,895	0,800	53,00	1,140 05	7,997	6,582	5,494
1,00	1,000 00	1,029	0,912	0,817	56,00	1,142 80	8,482	6,963	5,816
2,00	1,003 00	1,055	0,933	0,836	57,00	1,145 35	9,012	7,394	6,148
3,00	1,005 40	1,081	0,959	0,850	58,00	1,148 30	9,590	7,830	6,495
4,00	1,007 80	1,112	0,984	0,877	59,00	1,151 05	10,25	8,312	6,879
5,00	1,010 15	1,143	1,010	0,900	60,00	1,153 80	10,98	8,823	7,312
6,00	1,012 55	1,175	1,037	0,924	61,00	1,156 55	11,71	9,253	7,740
7,00	1,014 95	1,207	1,064	0,948	62,00	1,159 30	12,52	10,11	8,200
8,00	1,017 30	1,239	1,092	0,973	63,00	1,162 05	13,43	10,83	8,612
9,00	1,019 70	1,274	1,121	0,997	64,00	1,164 75	14,42	11,57	9,086
10,00	1,022 10	1,311	1,153	1,024	65,00	1,167 50	15,34	12,36	9,62
11,00	1,024 55	1,350	1,186	1,052	66,00	1,170 25	16,73	13,22	10,68
12,00	1,027 05	1,390	1,221	1,082	67,00	1,173 00	17,98	14,16	11,45
13,00	1,029 55	1,431	1,259	1,112	68,00	1,175 75	19,40	15,13	12,33
14,00	1,032 10	1,473	1,299	1,143	69,00	1,178 50	21,07	16,62	13,27
15,00	1,034 50	1,517	1,331	1,174	70,00	1,181 25	22,94	17,96	14,32
16,00	1,036 95	1,565	1,370	1,207	71,00	1,183 95	25,12	19,53	15,50
17,00	1,039 45	1,614	1,411	1,244	72,00	1,186 70	27,56	21,29	16,68
18,00	1,041 95	1,664	1,453	1,281	73,00	1,189 40	30,21	23,28	18,34
19,00	1,044 40	1,715	1,493	1,320	74,00	1,192 15	33,04	25,46	19,93
20,00	1,046 90	1,769	1,542	1,360	75,00	1,194 85	36,16	27,73	21,68
21,00	1,049 50	1,829	1,592	1,403	76,00	1,197 60	40,19	30,50	23,60
22,00	1,052 05	1,892	1,644	1,447	77,00	1,200 30	44,53	33,58	25,90
23,00	1,054 65	1,957	1,699	1,494	78,00	1,203 05	49,57	37,13	28,68
24,00	1,057 20	2,025	1,754	1,541	79,00	1,205 75	55,47	41,16	31,62
25,00	1,059 80	2,095	1,810	1,590	80,00	1,208 50	62,0	45,56	34,92
26,00	1,062 40	2,167	1,870	1,641	81,00	1,211 25	69,3	51,02	38,56
27,00	1,064 95	2,242	1,934	1,695	82,00	1,213 90	77,9	56,90	42,92
28,00	1,067 55	2,324	2,002	1,753	83,00	1,216 50	87,9	64,2	47,90
29,00	1,070 10	2,410	2,082	1,812	84,00	1,219 15	99,6	72,2	53,63
30,00	1,072 70	2,501	2,157	1,876	85,00	1,221 80	112,9	81,5	60,05
31,00	1,075 35	2,597	2,235	1,942	86,00	1,224 45	129,6	92,6	68,1
32,00	1,078 00	2,700	2,318	2,012	87,00	1,227 10	150,4	105,1	77,5
33,00	1,080 70	2,809	2,407	2,088	88,00	1,229 75	174,5	121,6	88,8
34,00	1,083 35	2,921	2,502	2,167	89,00	1,232 45	201,4	141,8	101,1
35,00	1,086 00	3,040	2,604	2,249	90,00	1,235 10	231,6	163,6	115,3
36,00	1,088 65	3,159	2,706	2,335	90,50	.....	255,0	179,06	124,3
37,00	1,091 35	3,280	2,817	2,427	91,00	1,237 70	278,4	190,3	134,4
38,00	1,094 00	3,440	2,933	2,523	91,50	.....	302,8	204,0	145,0
39,00	1,096 65	3,593	3,052	2,624	92,00	1,240 35	328,4	221,8	156,3
40,00	1,099 30	3,750	3,181	2,731	92,50	.....	356,2	241,2	169,3
41,00	1,102 00	3,917	3,319	2,845	93,00	1,243 00	387,7	265,9	182,8
42,00	1,104 70	4,106	3,466	2,966	93,50	.....	421,3	285,7	196,2
43,00	1,107 40	4,307	3,624	3,094	94,00	1,245 60	457,7	306,7	212,0
44,00	1,110 10	4,509	3,787	3,231	94,50	.....	498,5	335,6	229,0
45,00	1,112 80	4,713	3,967	3,380	95,00	1,248 25	545	366,0	245,8
46,00	1,115 50	4,952	4,165	3,540	95,50	.....	601	397,8	271,4
47,00	1,118 20	5,206	4,387	3,706	96,00	1,250 80	661	435,0	296,7
48,00	1,120 90	5,485	4,631	3,873	96,50	.....	731	476,8	324,3
49,00	1,123 60	5,770	4,897	4,051	97,00	1,253 35	803	522,9	354,0
50,00	1,126 35	6,090	5,041	4,247	97,50	.....	885	571	387,4
51,00	1,129 05	6,390	5,219	4,467	98,00	1,255 90	974	629	424,0
52,00	1,131 80	6,704	5,397	4,709	98,50	.....	1080	698	465,3
53,00	1,134 55	7,158	5,610	4,957	99,00	1,258 50	1337	856	504
54,00	1,137 30	7,562	6,230	5,210	100,00	1,261 08	1499	945	624

## C.2.3. Solutions aqueuses de NaCl [C-5]

Ces valeurs sont données pour une température de 20°C.

% de NaCl	Masse spécifique g.cm <sup>-3</sup>	1/η Poise <sup>-1</sup>	Conductance mS.cm <sup>-1</sup>	% de NaCl	Masse spécifique g.cm <sup>-3</sup>	1/η Poise <sup>-1</sup>	Conductance mS.cm <sup>-1</sup>
0.10	0.9989	99.61	1.7	3.90	1.0261	93.78	56.0
0.20	0.9997	99.43	3.3	4.00	1.0268	93.64	57.3
0.30	1.0004	99.24	5.0	4.10	1.0275	93.49	58.6
0.40	1.0011	99.06	6.6	4.20	1.0282	93.35	59.9
0.50	1.0018	98.89	8.2	4.30	1.0290	93.20	61.2
0.60	1.0025	98.71	9.8	4.40	1.0297	93.06	62.5
0.70	1.0032	98.54	11.4	4.50	1.0304	92.91	63.8
0.80	1.0039	98.37	12.9	4.60	1.0311	92.76	65.1
0.90	1.0046	98.20	14.4	4.70	1.0318	92.61	66.3
1.00	1.0053	98.04	16.0	4.80	1.0326	92.46	67.6
1.10	1.0060	97.87	17.5	4.90	1.0333	92.31	68.9
1.20	1.0068	97.72	18.9	5.00	1.0340	92.15	70.1
1.30	1.0075	97.56	20.4	5.20	1.0355	91.84	72.6
1.40	1.0082	97.41	21.8	5.40	1.0369	91.53	75.1
1.50	1.0089	97.26	23.2	5.60	1.0384	91.22	77.5
1.60	1.0096	97.11	24.6	5.80	1.0398	90.90	80.0
1.70	1.0103	96.96	26.0	6.00	1.0413	90.59	82.4
1.80	1.0110	96.82	27.4	6.20	1.0427	90.27	84.7
1.90	1.0117	96.67	28.8	6.40	1.0442	89.95	87.1
2.00	1.0125	96.52	30.2	6.60	1.0456	89.63	89.4
2.10	1.0132	96.37	31.6	6.80	1.0471	89.31	91.8
2.20	1.0139	96.22	33.0	7.00	1.0486	88.99	94.1
2.30	1.0146	96.07	34.3	7.20	1.0500	88.66	96.4
2.40	1.0153	95.93	35.7	7.40	1.0515	88.33	98.7
2.50	1.0160	95.78	37.1	7.60	1.0530	88.00	101.
2.60	1.0168	95.64	38.5	7.80	1.0544	87.67	103.
2.70	1.0175	95.49	39.9	8.00	1.0559	87.33	105.
2.80	1.0182	95.35	41.2	8.20	1.0574	86.99	107.
2.90	1.0189	95.21	42.6	8.40	1.0588	86.65	109.
3.00	1.0196	95.06	44.0	8.60	1.0603	86.30	112.
3.10	1.0203	94.92	45.3	8.80	1.0618	85.95	114.
3.20	1.0211	94.78	46.7	9.00	1.0633	85.60	116.
3.30	1.0218	94.64	48.0	9.20	1.0647	85.25	118.
3.40	1.0225	94.50	49.4	9.40	1.0662	84.89	120.
3.50	1.0232	94.35	50.7	9.60	1.0677	84.53	122.
3.60	1.0239	94.21	52.0	9.80	1.0692	84.16	124.
3.70	1.0246	94.07	53.3	10.00	1.0707	83.80	126.
3.80	1.0254	93.93	54.7				





**Annexe D.**  
**Champ électrique dans le liquide,**  
**formation de la « couche double ».**



Une solution conductrice est composée d'un solvant (supposé pur et non conducteur), et d'un soluté électrolytique (molécules qui, en milieu liquide, se dissocient en ions chargés capables de conduire un courant). En l'absence de champ électrique, le mouvement des ions chargés est aléatoire dans le liquide. Par contre s'il existe des différences de potentiel dans une solution conductrice, alors un flux de charges se produit et il y a conduction. La conductivité de la solution augmente avec la concentration d'électrolytes introduits.

Du fait de la piézo-électricité du substrat et des permittivités relatives des différents matériaux de la structure, la propagation de l'onde de Love génère un champ électrique à l'interface  $\text{SiO}_2$  / liquide, qui s'étend sur plusieurs microns et se couple au milieu liquide. Sous l'action de ce champ électrique, les ions et dipôles en solution se redistribuent spatialement. Comme le potentiel électrique associé à la propagation de l'onde pénètre dans le liquide, toute variation des propriétés électriques du milieu liquide (permittivité, conductivité) affecte le potentiel de l'onde et donc modifie ses caractéristiques de propagation (vitesse de phase et amplitude) : c'est ce que l'on appelle le couplage acousto-électrique.

Dans le cas des dispositifs à mode de plaque [D-1], une conductivité électrique critique est définie :

$$\sigma = \sigma_c = \omega(\epsilon_s + \epsilon_L)$$

- $\sigma$  : conductivité électrique du liquide.
- $\sigma_c$  : conductivité critique.
- $\epsilon_s$  : permittivité électrique du substrat.
- $\epsilon_L$  : permittivité électrique du liquide.

En considérant un substrat de quartz, et des fréquences de fonctionnement typiques ( $\approx 100$  MHz) nous avons :  $\sigma_c \approx 0,75 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ .

La formation de la « couche double » (terme anglo-saxon : double layer) dépend de la valeur de la conductivité électrique de la solution. Si  $\sigma < 2\sigma_c$ , les ions présents en solution ne se redistribuent pas assez vite, et le champ électrique pénètre dans le liquide.

En revanche, si  $\sigma > 2\sigma_c$ , les ions chargés se redistribuent rapidement dans le liquide au voisinage de la surface du  $\text{SiO}_2$ . Il apparaît ainsi à l'interface  $\text{SiO}_2$  / liquide une couche de liquide aux propriétés particulières. Cette couche double est équivalente à un plan métallique qui court-circuite le champ électrique de l'onde à l'interface  $\text{SiO}_2$  / liquide et l'empêche

d'interagir avec les ions en solution. Nous pouvons alors modéliser le comportement électrique de la solution en utilisant l'équation de poisson pour un liquide non chargé.





**Annexe E.**  
**Compléments mathématiques**



**E.1. Résolution numérique : modèle multicouche dans le cas des ondes de Love.**

Une description complète et précise de la résolution numérique a été décrite dans la thèse de J.C. Andle [E-1] et reprise par Irène Esteban [E-2], dans le cas de la propagation des ondes SH-APM. Dans cette thèse, nous appliquons cette résolution dans le cas des ondes de Love. Dans cette annexe, nous présentons les calculs qui nous ont permis de générer la matrice des conditions de continuités (matrice [B]).

*E.1.1. Généralités*

Les ondes SH-APM ont la même polarisation que les ondes de Love, transverse horizontale pure. Cependant, le nombre de couches qui composent notre système est supérieur à ceux des dispositifs à mode de plaque. Ainsi, le déplacement acoustique  $U_2(x_1, x_3, t)$  et le champ électrique  $U_4(x_1, x_3, t)$  auront les mêmes expressions dans les deux dispositifs, cependant les paramètres physiques intervenant dans leurs expressions seront différents, de plus le plus grand nombre de couches implique un système de conditions aux limites plus important ici, que dans le cas des ondes SH-APM. Nous considérons un système sans perte, ce qui revient à considérer un vecteur d'onde réel  $k=2\pi/\lambda$ .

Rappelons les expressions des différentes composantes électriques et acoustiques de notre système, en se limitant aux ondes transverses horizontales :

Déplacement acoustique :  $U_2(x_1, x_3, t) = \alpha_2 \exp(-\beta k.x_3) \exp j(\omega t) \exp(-k.x_1)$  (E-1)

Champ électrique :  $U_4(x_1, x_3, t) = \alpha_4 \exp(-\beta k.x_3) \exp j(\omega t) \exp(-k.x_1)$  (E-2)

Avec :

$\alpha_2$  et  $\alpha_4$ , respectivement les amplitudes du déplacement acoustique et du champ électrique.

$\beta = \frac{k_3}{k}$ , nombre d'onde transverse normalisé par rapport à  $k$ .

$\omega$ , pulsation de l'onde.

$k$ , vecteur d'onde, ( $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ ).

Les ondes qui vont se propager dans chaque couche de notre système sont des combinaisons linéaires des huit ondes partielles de nombres d'onde transverse normalisés  $\beta^{(n)}$  et d'amplitudes  $\alpha_i^{(n)}$  ( $i = 1 \text{ à } 4$ , et  $n = 1 \text{ à } 8$ ) susceptibles de se propager dans la direction  $x_1$  de chaque matériau considéré comme volumique (infini).

Ces coefficients  $\alpha_i^{(n)}$  et  $\beta^{(n)}$  dépendent du milieu de propagation et sont calculés de manière matricielle dans le cas du quartz, et analytique dans le cas des matériaux isotropes.

Il a été démontré que les coefficients  $\alpha_{2,4}^{(7,8)}$  et  $\beta^{(7,8)}$  sont non nuls dans le cas des ondes transverses horizontales [E-1].

Nous écrivons alors les expressions des déplacements acoustiques, et du champ électrique sous la forme :

$$U_2(x_1, x_3, t) = \sum_{n=1}^8 \zeta^{(n)} \alpha_2^{(n)} \exp(-\beta^{(n)} k x_3) \exp j(\omega t) \exp(-k x_1) \quad (\text{E-3})$$

$$U_4(x_1, x_3, t) = \sum_{n=1}^8 \zeta^{(n)} \alpha_4^{(n)} \exp(-\beta^{(n)} k x_3) \exp j(\omega t) \exp(-k x_1) \quad (\text{E-4})$$

Les termes  $\zeta^{(n)}$  ( $n = 1 \text{ à } 8$ ) sont huit coefficients de pondération traduisant la contribution relative de chaque onde partielle.

Les conditions de continuités de notre système concerne les grandeurs suivantes :

Déplacement acoustique : équation (E-3).

Champ électrique : équation (E-4).

$$\text{Contrainte mécanique normale : } T_{32}(x_3) = \sum_{n=1}^8 \zeta^{(n)} t_{32}^{(n)} \exp(-j\beta^{(n)} k x_3) \quad (\text{E-5})$$

$$\text{avec } t_{32}^{(n)} = -jk[\alpha_2^{(n)}(C_{46} + C_{44}\beta^{(n)}) + \alpha_4^{(n)}(e_{14} + e_{34}\beta^{(n)})]$$

$$\text{Déplacement électrique normal : } D_3(x_3) = \sum_{n=1}^8 \zeta^{(n)} d_3^{(n)} \exp(-j\beta^{(n)} k x_3) \quad (\text{E-6})$$

$$\text{avec } d_3^{(n)} = -jk[\alpha_2^{(n)}(e_{36} + e_{34}\beta^{(n)}) - \alpha_4^{(n)}(\epsilon_{31} + \epsilon_{33}\beta^{(n)})]$$

Nous avons :

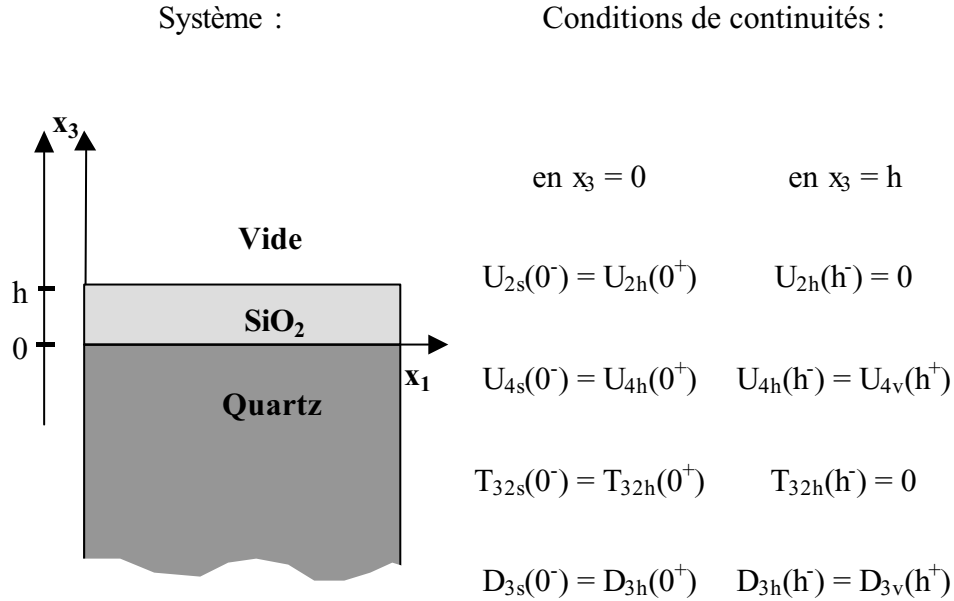
- $C_{\alpha\beta}$  : matrice des rigidités élastiques ( $\text{N.m}^{-2}$ ).  
 $e_{i\alpha}$  : coefficient de piézo-électricité ( $\text{N.m}^{-2}$ ).  
 $\epsilon_{ij}$  : tenseur de permittivité diélectrique ( $\text{F.m}^{-1}$ )

Dans le cas des matériaux isotropes, non dissipatifs, nous avons  $C_{46} = 0$ , et  $C_{44} = \mu$ .

Ainsi pour chaque configuration de notre dispositif à ondes de Love, nous pouvons déterminer une matrice B, ayant deux équations, et deux inconnues. Les résultats obtenus sont exposés dans la suite de cette partie.

Afin d'exprimer les différents paramètres physiques de notre système, nous utilisons en indices : la lettre « s » pour le substrat de quartz, la lettre « h » pour la couche guidante de  $\text{SiO}_2$ , la lettre « b » pour la couche sensible, la lettre « L » pour le liquide, et enfin la lettre « v » pour le vide.

E.1.2. *Modèle trois couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / vide)*

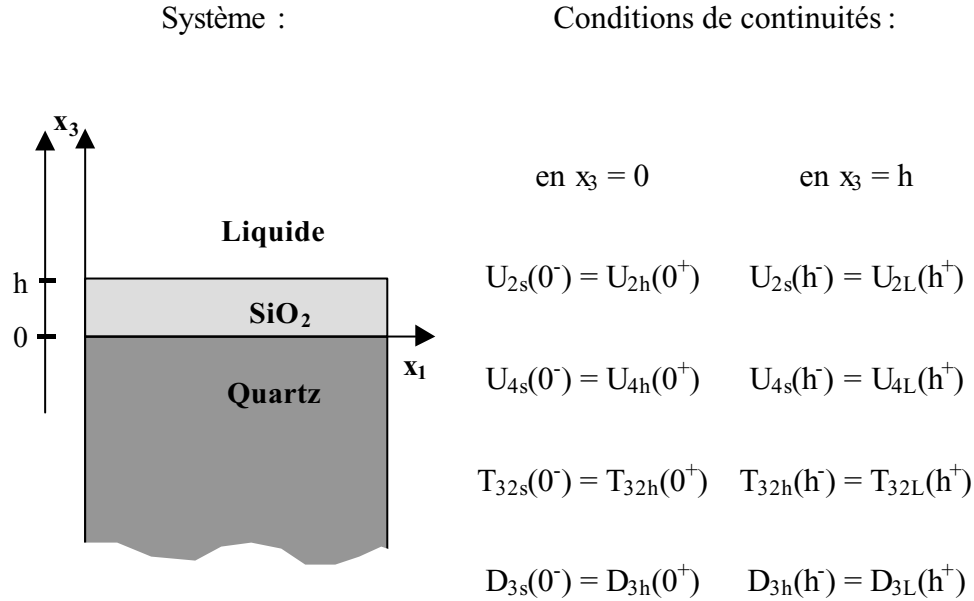


En remplaçant les différents paramètres des équations de continuités par leurs valeurs, et après simplification, nous trouvons le système de deux équations à deux inconnues ( $[B][\zeta] = 0$ ) suivant :

$$\begin{bmatrix} t_{32s}^5 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\phi_1 & t_{32s}^7 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\phi_1 \\ d_{3s}^5 + k\epsilon_h\alpha_{4s}^5\phi_2 & d_{3s}^7 + k\epsilon_h\alpha_{4s}^5\phi_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \zeta_s^5 \\ \zeta_s^7 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

avec  $\phi_1 = \frac{1 - \exp(-2j\beta_h kh)}{1 + \exp(-2j\beta_h kh)}$  et  $\phi_2 = \frac{1 - \left(\frac{\epsilon_h + \epsilon_0}{\epsilon_h - \epsilon_0}\right) \exp(2kh)}{1 + \left(\frac{\epsilon_h + \epsilon_0}{\epsilon_h - \epsilon_0}\right) \exp(2kh)}$

E.1.3. *Modèle trois couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / liquide)*

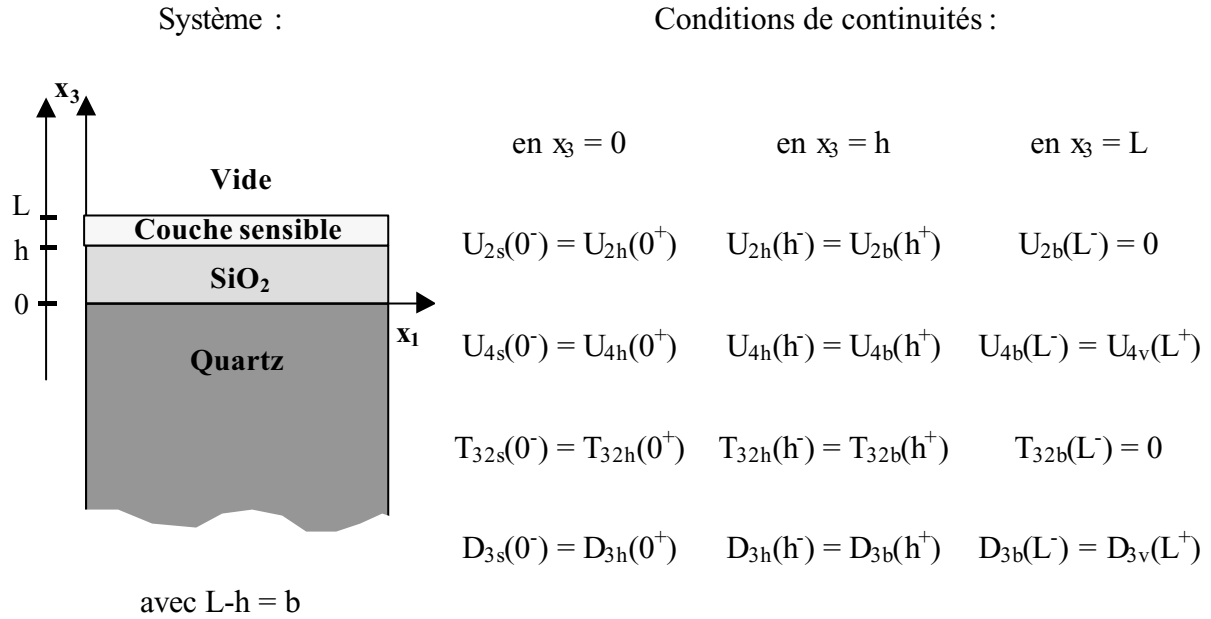


En remplaçant les différents paramètres des équations de continuités par leurs valeurs, et après simplification, nous trouvons le système de deux équations à deux inconnues ( $[B][\zeta] = 0$ ) suivant :

$$\begin{bmatrix} t_{32s}^5 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\phi_1 & t_{32s}^7 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\phi_1 \\ d_{3s}^5 + k\epsilon_h\alpha_{4s}^5\phi_2 & d_{3s}^7 + k\epsilon_h\alpha_{4s}^5\phi_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \zeta_s^5 \\ \zeta_s^7 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

avec  $\phi_1 = \frac{1 - \left(\frac{\mu_h\beta_h - \mu_L\beta_L}{\mu_h\beta_h + \mu_L\beta_L}\right) \exp(-2j\beta_h kh)}{1 + \left(\frac{\mu_h\beta_h - \mu_L\beta_L}{\mu_h\beta_h + \mu_L\beta_L}\right) \exp(-2j\beta_h kh)}$  et  $\phi_2 = \frac{1 - \left(\frac{\epsilon_h + \epsilon_0}{\epsilon_h - \epsilon_0}\right) \exp(2kh)}{1 + \left(\frac{\epsilon_h + \epsilon_0}{\epsilon_h - \epsilon_0}\right) \exp(2kh)}$

E.1.4. Modèle quatre couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / couche sensible / vide)



En remplaçant les différents paramètres des équations de continuités par leurs valeurs, et après simplification, nous trouvons le système de deux équations à deux inconnues ( $[B][\zeta] = 0$ ) suivant :

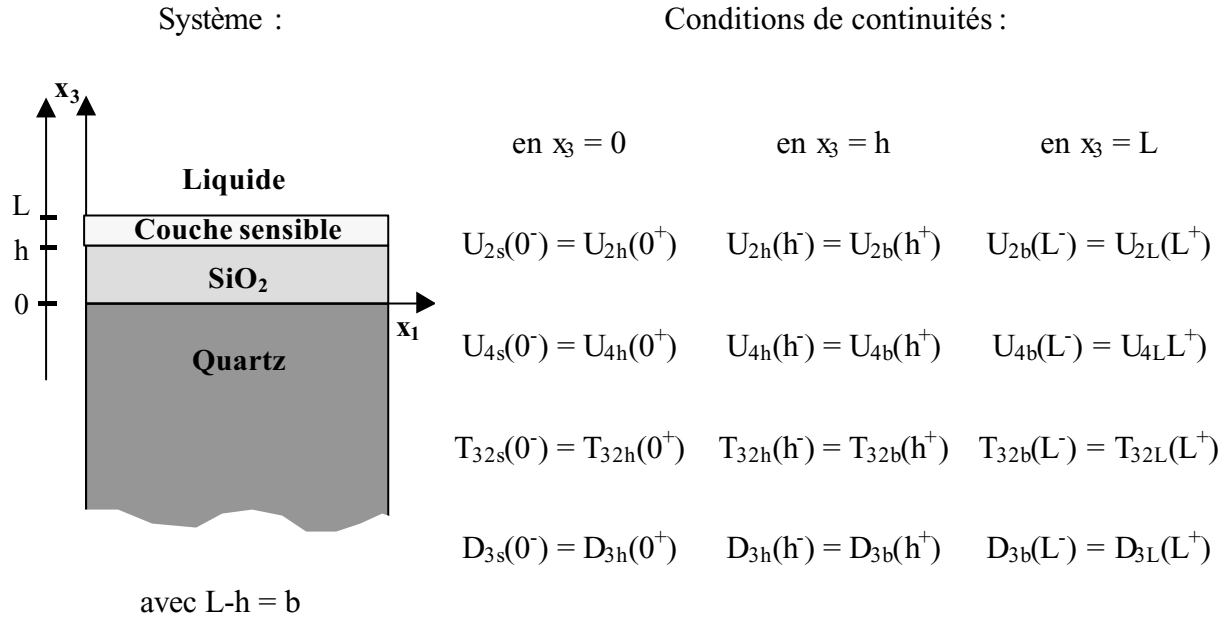
$$\begin{bmatrix} t_{32s}^5 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\Psi_1 & t_{32s}^7 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\Psi_1 \\ d_{3s}^5 + k\varepsilon_h\alpha_{4s}^5\Psi_2 & d_{3s}^7 + k\varepsilon_h\alpha_{4s}^5\Psi_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \zeta_s^5 \\ \zeta_s^7 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

$$\text{avec } \Psi_1 = \frac{1 - \left(\frac{\phi_1 - 1}{\phi_1 + 1}\right) \exp(-2j\beta_h kh)}{1 + \left(\frac{\phi_1 - 1}{\phi_1 + 1}\right) \exp(-2j\beta_h kh)} \quad \text{et} \quad \phi_1 = \frac{1 - \exp(-2j\beta_b kb) \mu_h \beta_h}{1 + \exp(-2j\beta_b kb) \mu_b \beta_b}$$

$$\text{avec } \Psi_2 = \frac{1 - \left(\frac{\phi_2 - 1}{\phi_2 + 1}\right) \exp(2kh)}{1 + \left(\frac{\phi_2 - 1}{\phi_2 + 1}\right) \exp(2kh)} \quad \text{et} \quad \phi_2 = \frac{1 - \left(\frac{\varepsilon_b + \varepsilon_0}{\varepsilon_b - \varepsilon_0}\right) \exp(2kh) \varepsilon_h}{1 + \left(\frac{\varepsilon_b + \varepsilon_0}{\varepsilon_b - \varepsilon_0}\right) \exp(2kh) \varepsilon_b}$$



E.1.5. *Modèle quatre couches : (quartz / SiO<sub>2</sub> / couche sensible / liquide)*



En remplaçant les différents paramètres des équations de continuités par leurs valeurs, et après simplification, nous trouvons le système de deux équations à deux inconnues ( $[B][\zeta] = 0$ ) suivant :

$$\begin{bmatrix} t_{32s}^5 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\Psi_1 & t_{32s}^7 + jk\mu_h\beta_h\alpha_{2s}^5\Psi_1 \\ d_{3s}^5 + k\varepsilon_h\alpha_{4s}^5\Psi_2 & d_{3s}^7 + k\varepsilon_h\alpha_{4s}^5\Psi_2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \zeta_s^5 \\ \zeta_s^7 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

$$\text{avec } \Psi_1 = \frac{1 - \left(\frac{\phi_1 - 1}{\phi_1 + 1}\right) \exp(-2j\beta_h kh)}{1 + \left(\frac{\phi_1 - 1}{\phi_1 + 1}\right) \exp(-2j\beta_h kh)} \quad \text{et} \quad \phi_1 = \frac{1 - \frac{\mu_b\beta_b - \mu_L\beta_L}{\mu_b\beta_b + \mu_L\beta_L} \exp(-2j\beta_b kb)}{1 + \frac{\mu_b\beta_b - \mu_L\beta_L}{\mu_b\beta_b + \mu_L\beta_L} \exp(-2j\beta_b kb)} \frac{\mu_h\beta_h}{\mu_b\beta_b}$$

$$\text{avec } \Psi_2 = \frac{1 - \left(\frac{\phi_2 - 1}{\phi_2 + 1}\right) \exp(2kh)}{1 + \left(\frac{\phi_2 - 1}{\phi_2 + 1}\right) \exp(2kh)} \quad \text{et} \quad \phi_2 = \frac{1 - \left(\frac{\varepsilon_b + \varepsilon_L}{\varepsilon_b - \varepsilon_L}\right) \exp(2kh)}{1 + \left(\frac{\varepsilon_b + \varepsilon_L}{\varepsilon_b - \varepsilon_L}\right) \exp(2kh)} \frac{\varepsilon_h}{\varepsilon_b}$$

**E.2. Résolution analytique : séparation des parties réelle, et imaginaire de  $\arctan((-1+j)v$ )**

Afin d'extraire les parties réelle et imaginaire de  $\arctan[(-1+j)v]$ , nous utilisons le logiciel de calcul formel Maple V.

Module du code sous Maple V

```

> restart;
> arctan((-1+j)*nu)=evalc(arctan(-nu+I*nu));

$$\arctan((-1+j)v) = \frac{1}{2} \arctan(-v, 1-v) - \frac{1}{2} \arctan(v, v+1) + \frac{1}{4} I \ln \left( \frac{v^2 + (v+1)^2}{v^2 + (v-1)^2} \right)$$

> For real arguments x, y, the two-argument function arctan(y,x), computes the principal value of the argument of the complex number x+I*y.
```

Nous pouvons donc écrire la partie réelle de l'expression précédente sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \arctan(-v, 1-v) - \frac{1}{2} \arctan(v, 1+v) &= \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{-v}{1-v}\right) - \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{v}{1+v}\right) \\ &= -\frac{1}{2} \left\{ \arctan\left(\frac{v}{1-v}\right) + \arctan\left(\frac{v}{1+v}\right) \right\} \end{aligned}$$

or  $\arctan(a) + \arctan(b) = \arctan\left(\frac{a+b}{1-ab}\right)$

$$\Rightarrow -\frac{1}{2} \left\{ \arctan\left(\frac{v}{1-v}\right) + \arctan\left(\frac{v}{1+v}\right) \right\} = -\frac{1}{2} \left\{ \arctan\left(\frac{\frac{v}{1-v} + \frac{v}{1+v}}{1 - \frac{v}{1-v} \frac{v}{1+v}}\right) \right\}$$

$$= -\frac{1}{2} \left\{ \arctan\left(\frac{2v}{(1-v^2)\left(1 - \frac{v^2}{1-v^2}\right)}\right) \right\}$$

$$\text{Re}\{\arctan[(-1+j)v]\} = \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{-2v}{1-2v^2}\right)$$

**Annexe F.**  
**Programme d'acquisition du banc de test.**



### F.1. Nécessité d'une acquisition informatique.

Sur la Figure F-1, nous pouvons voir le banc de test utilisé pour les différentes expériences à l'oscillateur.

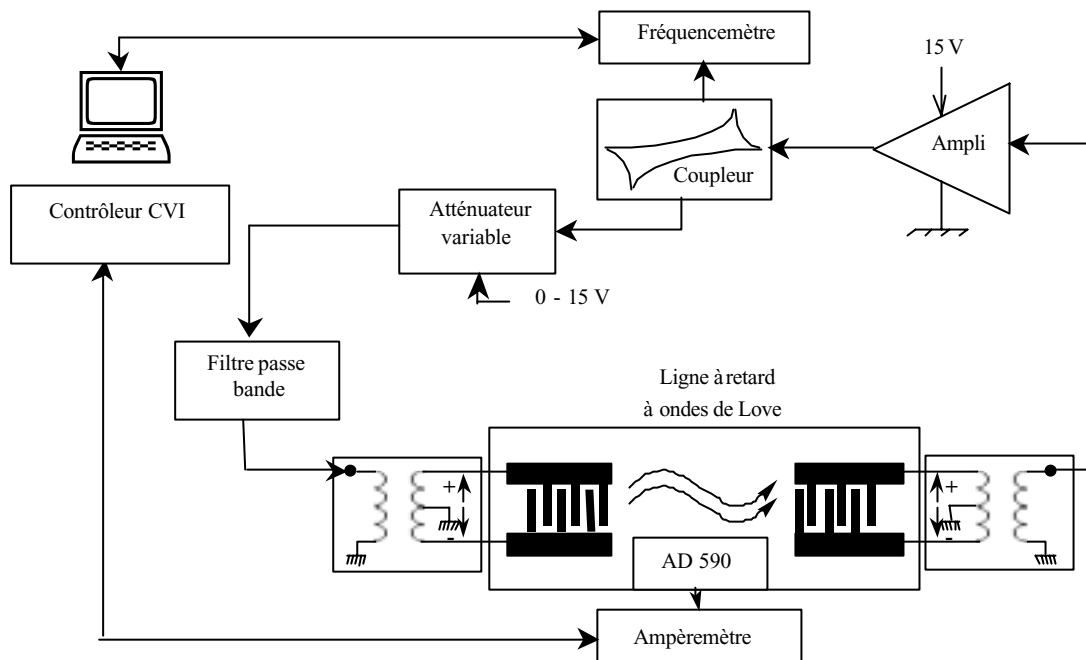


Figure F-1 : Synoptique du banc de test de l'oscillateur à ondes de Love.

Afin d'améliorer l'aisance de la mesure des différentes variables, nous avons réalisé un programme d'acquisition qui nous permet d'enregistrer la fréquence d'oscillation du dispositif et la température du système en fonction du temps.

Cela nous permet de nous concentrer sur les actions manuelles des différents protocoles durant toute la longueur des différentes expériences. Certaines modifications des paramètres en temps réel sont possibles et permettent d'améliorer la lecture et/ou la résolution de l'acquisition durant les expériences.

Nous présentons dans le paragraphe suivant ce programme d'acquisition réalisé à l'aide de Labwindows CVI® et nommé « ACQUYS.prj ».

## F.2. Présentation du programme d'acquisition

### F.2.1. Configuration des paramètres d'acquisition

Avant de lancer l'acquisition, la première fenêtre (cf. Figure F-2) permet de configurer les différents paramètres.

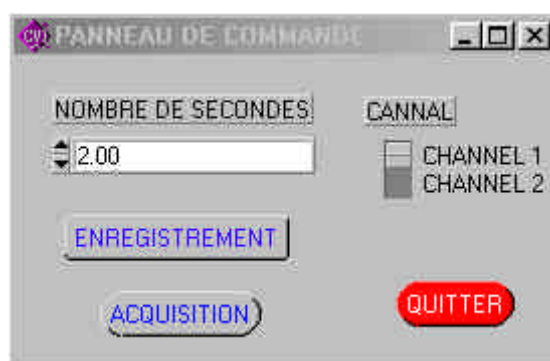


Figure F-2 : Panneau de commande

Ainsi l'utilisateur peut définir :

- Le nombre de secondes qui détermine l'intervalle d'attente entre deux mesures.
- Le canal d'enregistrement (le fréquencemètre HP 5313A comporte deux voies de mesure).
- Le nom du fichier (format texte) où les données seront stockées. En appuyant sur le bouton « enregistrement », la fenêtre qui permet la saisie du nom du fichier est présentée sur la Figure F-3.
- L'acquisition est lancée en appuyant sur le bouton « ACQUISITION ».
- Le programme peut être interrompu en appuyant sur le bouton « QUITTER ».



Figure F-3 : Panneau de saisie du nom de fichier.

F.2.2. Visualisation de l'acquisition

Une fois l'acquisition lancée, la fenêtre représenté sur la Figure F-4 est générée. En appuyant sur le bouton « DEMARRER », l'utilisateur démarre l'acquisition.

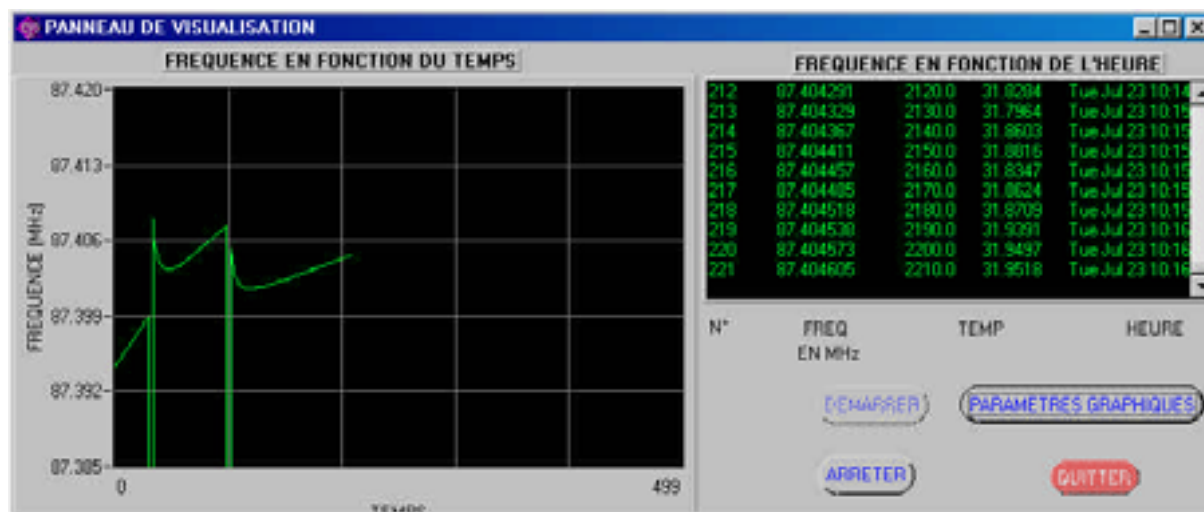


Figure F-4 : Panneau de visualisation de l'acquisition

Ainsi, sur le tableau de gauche (FREQUENCE EN FONCTION DU TEMPS), l'utilisateur peut visualiser en temps réel sur un graphique déroulant l'évolution de la fréquence de l'oscillateur en fonction du temps.

Sur le tableau de droite (FREQUENCE EN FONCTION DE L'HEURE), l'utilisateur peut visualiser en temps réel pour chaque échantillon :

- la valeur de la fréquence de l'oscillateur avec une précision au Hz,
- la durée écoulée depuis le démarrage,
- la température du système,
- l'heure de l'horloge du PC.

Pour des raisons de stabilité, le tableau de droite est rafraîchi toutes les 3000 mesures.

En appuyant sur le bouton « ARRETER », l'utilisateur peut suspendre l'acquisition, il aura alors accès à l'historique des 3000 derniers points enregistrés.

En appuyant sur le bouton « QUITTER », l'utilisateur peut quitter le programme d'acquisition.

Enfin, afin d'améliorer la résolution de la lecture, certaines modifications en temps réel peuvent être effectuées en appuyant sur le bouton « PARAMETRES GRAPHIQUES ». La fenêtre qui est générée est présentée sur la Figure F-5.

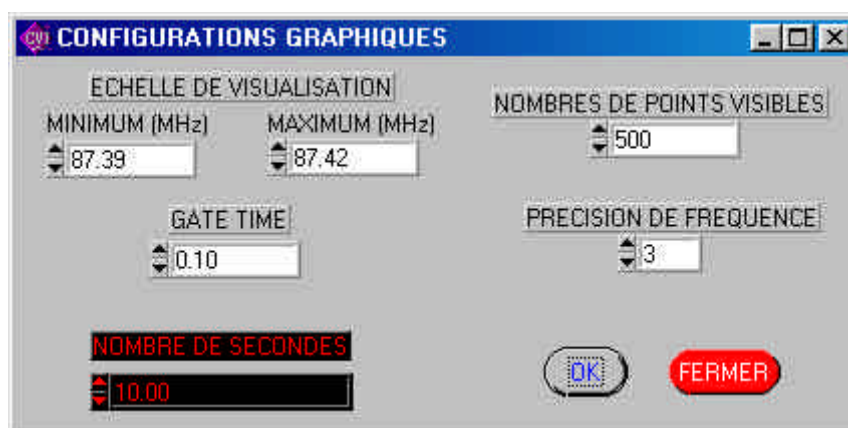


Figure F-5 : Panneau de réglage des configurations graphiques.

L'utilisateur peut modifier :

- l'échelle de visualisation en fréquence du graphique déroulant, il pourra ainsi par exemple affiner la lecture pour des petites variations de fréquences.
- Le nombre de points visibles en abscisse du graphique déroulant.
- La précision en fréquence qui correspond au nombre de décimales après le MHz.
- Le « GATE TIME » qui correspond au temps d'ouverture du fréquencemètre pour la mesure d'une fréquence.
- Le nombre de secondes qui détermine l'intervalle d'attente entre deux mesures.

Toutes les modifications sont prises en compte en appuyant sur le bouton « OK », et la fenêtre des configurations graphiques peut être masquée en appuyant sur le bouton « FERMER ».





**BIBLIOGRAPHIE**



**REFERENCES DU CHAPITRE I**

- [I-1] G. Sauerbrey, « Verwendung von schwingquarzen zur wagung duenner schichten und fur mikro-waegung », Z. Phys., 155, pp 206-222, (1959)
- [I-2] M.J. Vellekoop, « Temperature-compensated Love-wave sensors on quartz substrates », Sens. & Act., 82, pp. 83-88, (2000).
- [I-3] A.J. Ricco, S.J. Martin, « Multiple-frequency SAW devices for chemical sensing and material characterization », Tansducers, pp. 385-388, (1991)
- [I-4] S.J. Martin, G.C. Frye, A.J. Ricco, Zipperian, « Measuring thin-film properties using SAW devices : diffusivity area », Proc IEEE, Ultrasonic Symposium Denver pp. 563, (1987)
- [I-5] J. Rickert, A. Brecht, W. Göpel, « QCM operating in liquids : constant sensitivity during formation of extended protein multilayers by affinity », Anal. Chem., 69, pp. 2881-2887, (1997)
- [I-6] M. Weiss, W. Welsh, M.V. Schickus, S. Hunklinger, « Viscoelastic behavior of antibody films on a shear horizontal acoustic surface wave sensor », Anal. Chem., 70, pp. 2881-2887, (1998)
- [I-7] D. Royer, E. Dieulesaint, « Ondes élastiques dans les solides », Tome 1, « propagation libre et guidée », Ed. Masson, Paris, (1996)
- [I-8] Uttenthaler, E., Schräml, M., Mandel, J., Drost, S., « Ultrasensitive quartz crystal microbalance sensors for detection of M13-Phages in liquids » Biosensors & Bioelectronics 16, pp. 735-743, (2001)
- [I-9] D. Rebière, « Capteurs à ondes acoustiques de surface. Application à la détection des gaz », Thèse de doctorat n°826, Université Bordeaux 1, (1992)
- [I-10] B. Jakoby, G.M. Imail, M.P. Byfield et al., « A novel molecularly imprinted thin film applied to a Love wave gas sensor », Sens. & Act. A, 76, pp. 93-97, (1999)
- [I-11] C. Zimmermann, « Conception, réalisation et étude de microcapteurs à ondes de Love pour applications en milieu gazeux Cas de la propagation de composés organophosphorés », Thèse de doctorat n° 2471, Université Bordeaux 1, (2001)

- [I-12] D.S. Ballantine, S.J. Martin, A.J. Ricco, G.C. Frye, H. Wohltjen, R.M. White, E.T. Zellers, « Acoustic Wave Sensor Theory, Design, and Physico-Chemical Applications ». Academic press, San Diego, (1997)
- [I-13] B.A. Auld, « Acoustic fields and waves in solids », 2 volumes, Second Edition – Robert E. Krieger, Publishing Company, (1990)
- [I-14] J. Kondoh, S. Shiokawa, « SH-SAW taste sensor based on acoustoelectric interaction », Proc. IEEE Ultrasonic symposium, pp. 421-424, (1993)
- [I-15] J. Kondoh, S. Shiokawa, Z. Georgiev, « A shear-horizontal SAW device as a pH monitor », Sens. & Act. B, 13-14, pp. 429-431, (1993)
- [I-16] B. Jakoby, M.J. Vellekoop, « Viscosity sensing using a Love-wave device », Sens. & Act. A, 68, pp. 275-281, (1998)
- [I-17] Rolf Shumacher « Quartz microbalance. A novel approach to the in situ Investigation of interfacial phenomena at the solid / liquid junction », Angewandte Chemie, 29(4), pp. 329-343, (1990)
- [I-18] C. Déjous, « Capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux. Application à la détection en milieux liquides et gazeux », Thèse de doctorat n° 1204, Université Bordeaux 1, (1994)
- [I-19] S.J. Martin, A.J. Ricco, T.M. Niemczyk, G.C. Frye, « Characterization of SH acoustic plate mode sensors », Sens. & Act., 20, pp. 253-268, (1989)
- [I-20] S. D. Curtin, B. Jakoby, Axel Berthold *et al.*, « A micromachined wet cell for a Love-wave liquid sensor », part of the SPIE Conference on Smart Electronics and MEMS, San Diego, California, 3328, (1998)
- [I-21] G.L. Harding, J. Du, P.R. Dencher *et al.*, « Love acoustic immunosensors operating in liquid », Sens. & Act. A, 61, pp. 279-286, (1997)
- [I-22] F. Josse, F. Bender, R. W. Cernosek, « Guided Shear Horizontal Surface Acoustic Wave Sensors for Chemical and Biochemical Detection in Liquids », Anal. Chem., 73(24), pp. 5937-5944, (2001)

- [I-23] F. Hermann, M Weihnacht, S. Büttgenbach, « Properties of sensors based on shear-horizontal surface acoustic waves in  $\text{LiTaO}_3$  /  $\text{SiO}_2$  and quartz /  $\text{SiO}_2$  structures », IEEE Trans. on UFFC, 48(1), pp. 268-273 (2001)
- [I-24] C. Mc Mullan, H. Mehta, E. Gizeli, , C.R. Lowe, « Modelling of the mass sensitivity of the Love wave device in the presence of a viscous liquid », J. Phys. D : Appl. Phys., 33, pp. 3053-3059, (2000)
- [I-25] G.L. Harding, J. Du, J.A. Ogilvy, P.R. Dencher, M. Lake, « A study of Love-wave sensors », Sens. & Act. A, 56, pp. 211-219, (1996)
- [I-26] B. Jakoby, A. Venema, M.J. Vellekoop, « Design of Love wave sensor devices for the operation in liquid environments », Proc. IEEE Ultrasonic symposium, pp. 375-379, (1997)
- [I-27] E. Gizeli, C. R. Lowe, M. Liley, H. Vogel, « Detection of supported lipid layers with the acoustic Love waveguide device : application to biosensors » Sens. & Act. B, 34, pp. 295-300, (1996)
- [I-28] Y.S Wang, Z.M Zhang, « Propagation of Love waves in a transversely isotropic fluid-saturated porous layered half-space » J. Acoust. Soc. Am., 103 (2), pp 695-701, (1998)
- [I-29] B.A. Auld, « Acoustic fields waves in solids », 2 volumes, Second edition – Robert E. Krieger, Publishing Company, (1990)
- [I-30] G. Kovacs, G.W. Lubking, M.J. Vellekoop, A. Venema, « Love waves for (bio)chemical sensing in liquids », Proc. IEEE Ultrasonic symposium, pp. 281-285, (1992)
- [I-31] Esteban, « Etude et intégration de capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux (SH-APM). Application à la détection de gaz organophosphorés. », Thèse de doctorat n° 2030, Université Bordeaux 1, (1999)
- [I-32] F. Hermann, D. Hahn, S. Büttgenbach, « Separation of density and viscosity influence on liquid-loaded surface acoustic wave devices », Applied Physics Letters, 74(22), pp. 3410-3412, (1999)
- [I-33] G. Kovacs, M.J. Vellekoop, R. Haueis, G.W. Lubking, A. Venema, « A love wave sensor for (bio)chemical sensing in liquids », Sens. & Act. A, 43, pp. 38-43, (1994).

- [I-34] H. Nanto, T. Kawai, H Sokooshi, T. Usada, « Aroma identification using a quartz-resonator sensor in conjunction with pattern recognition », *Sens. & Act. B*, 13-14, pp. 718-720, (1993).
- [I-35] S. W. Wenzel, R. M. White, « Flexural Plate-Wave gravimetric chemical sensor », *Sens. & Act. A*, 21-23, pp. 700-703, (1990).
- [I-36] B. A. Martin, S. W. Wenzel, R. M. White, « Viscosity and density with Ultrasonic Plate Waves », *Sens. & Act. A*, 21-23, pp. 704-708, (1990).
- [I-37] S. E. Cowan, J. Black, J.D. Keasling, R.M. White, « Ultrasonic Flexural-Plate-Wave sensor for detecting the concentration of setting E. Coli W3110 Cells », *Anal. Chem.*, 71(16); pp. 3622-3625, (1999)
- [I-38] S. C. Joshi, Y. Jin, « Characteristics and applications of quasi-shear-horizontal acoustic waves », *Proc. IEEE International Ultrasonic*, 34, pp. 507-509, (1996)
- [I-39] R. Dahint, R. Ros Seigel, P. Harder, F. Josse, « Detection of non-specific protein at artificial surfaces by the use of acoustic plate mode sensors », *Sens. & Act. B* 35-36, pp. 497-505, (1996)

## REFERENCES DU CHAPITRE II

- [II-1] Z.A. Shana, « Theoretical analysis of the piezoelectric crystal/liquid interface for liquid-phase-based sensor applications », PhD dissertation, Marquette University, USA, (1991)
- [II-2] M. Feldmann, J. Hennaf, « Traitement du signal par ondes élastiques de surface », *Collection technique et scientifique des télécommunications*, Edition Masson (1986)
- [II-3] D. Rebière, « Capteurs à ondes acoustiques de surface. Application à la détection des gaz », Thèse de doctorat n°826, Université Bordeaux 1, (1992)
- [II-4] F. Hermann, M Weihnacht, S. Büttgenbach, « Properties of sensors based on shear-horizontal surface acoustic waves in  $\text{LiTaO}_3 / \text{SiO}_2$  and quartz /  $\text{SiO}_2$  structures », *IEEE Trans. on UFFC*, 48(1), pp. 268-273 (2001)
- [II-5] J.A. Ogilvy, « An approximate analysis of waves in layered piezoelectric plates from an interdigital source transducer », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 29, pp 876-884, (1996)

- [II-6] S.J. Martin, A.J. Ricco, T.M. Niemczyk, G.C. Frye, « Characterization of SH acoustic plate mode sensors », *Sens. & Act.*, 20, pp. 253-268, (1989)
- [II-7] J. Jakoby, M.J. Vellekoop, « Viscosity sensing using a Love-wave device », *Sens. & Act. A*, 68, pp. 275-281, (1998)
- [II-8] C. Déjous, « Capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux. Application à la détection en milieux liquides et gazeux », Thèse de doctorat n° 1204, Université Bordeaux 1, (1994)
- [II-9] C. Zimmermann, « Conception, réalisation et étude de microcapteurs à ondes de Love pour applications en milieu gazeux. Cas de la propagation de composés organophosphorés », Thèse de doctorat n° 2471, Université Bordeaux 1, (2001)
- [II-10] Esteban, « Etude et intégration de capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux (SH-APM). Application à la détection de gaz organophosphorés. », Thèse de doctorat n° 2030, Université Bordeaux 1, (1999)
- [II-11] J.C. Andle, « An experimental and theoretical analysis of acoustic plate mode devices for biosensor applications », Thèse, Université de Maine (USA), (1993)

### REFERENCES DU CHAPITRE III

- [III-1] J. Jakoby, M.J. Vellekoop, « Viscosity sensing using a Love-wave device », *Sens. & Act. A*, 68, pp. 275-281, (1998)
- [III-2] F. Hermann, D. Hahn, S. Büttgenbach, « Separation of density and viscosity influence on liquid-loaded surface acoustic wave devices », *Applied Physics Letters*, 74(22), pp. 3410-3412, (1999)
- [III-3] S.J. Martin, A.J. Ricco, T.M. Niemczyk, G.C. Frye, « Characterization of SH acoustic plate mode sensors », *Sens. & Act.*, 20, pp. 253-268, (1989)
- [III-4] C. Zimmermann, « Conception, réalisation et étude de microcapteurs à ondes de Love pour applications en milieu gazeux. Cas de la propagation de composés organophosphorés », Thèse de doctorat n° 2471, Université Bordeaux 1, (2001)
- [III-5] M. Feldmann, J. Hennaf, « Traitement du signal par ondes élastiques de surface », Collection technique et scientifique des télécommunications, Edition Masson (1986)

- [III-6] F. Hermann, M. Weihnacht, S. Büttgenbach, « Properties of sensors based on shear-horizontal surface acoustic waves in  $\text{LiTaO}_3 / \text{SiO}_2$  and quartz /  $\text{SiO}_2$  structures », IEEE Trans. on UFFC, 48(1), pp. 268-273 (2001)
- [III-7] J. Kondoh, S. Shiokawa, « SH-SAW taste sensor based on acoustoelectric interaction », Proc. IEEE Ultrasonic symposium, pp. 421-424, (1993)
- [III-8] C. Zimmermann, O. Tamarin, D. Rebière, C. Déjous, J. Pistré, R. Planade « Vapor Detection with Polysiloxane Coated Love-wave Devices. Influence of Thin Film Viscoelastic Properties: Sensitivity Analysis. », Proc. IEEE International Ultrasonic Symposium, Puerto Rico, 22-25 octobre 2000, p.467-470.
- [III-9] R. Lucklulm, P. Hauptmann, « Mass sensitivity, viscoelasticity and acoustic amplification of acoustic-wave microsensors » Proc. Eurosensors XIII, La Hague, pp. 453-456, (1999)
- [III-10] Kovacs, G.W. Lubking, M.J. Vellekoop, A. Venema, « Love waves for (bio)chemical sensing in liquids », Proc. IEEE Ultrasonic symposium, pp. 281-285, (1992)

### REFERENCES DU CHAPITRE IV

- [IV-1] C. Zimmermann, « Conception, réalisation et étude de microcapteurs à ondes de Love pour applications en milieu gazeux. Cas de la propagation de composés organophosphorés », Thèse de doctorat n° 2471, Université Bordeaux 1, (2001)
- [IV-2] D. Royer, E. Dieulesaint, « Ondes élastiques dans les solides », Tome 1, « propagation libre et guidée », Ed. Masson, Paris, (1996)
- [IV-3] D. Rebière, « Capteurs à ondes acoustiques de surface. Application à la détection des gaz », Thèse de doctorat n°826, Université Bordeaux 1, (1992)
- [IV-4] Esteban, « Etude et intégration de capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux (SH-APM). Application à la détection de gaz organophosphorés. », Thèse de doctorat n° 2030, Université Bordeaux 1, (1999)
- [IV-5] G. Kovacs, M.J. Vellekoop, R. Haueis, G.W. Lubking, A. Venema, « A love wave sensor for (bio)chemical sensing in liquids », Sens. & Act. A, 43, pp. 38-43, (1994).



- [IV-6] F. Hermann, D. Hahn, S. Büttgenbach, « Separation of density and viscosity influence on liquid-loaded surface acoustic wave devices », *Applied Physics Letters*, 74(22), pp. 3410-3412, (1999)
- [IV-7] C. Déjous, « Capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux. Application à la détection en milieux liquides et gazeux », Thèse de doctorat n° 1204, Université Bordeaux 1, (1994)
- [IV-8] B. Jakoby, A. Venema, M.J. Vellekoop, « Design of Love wave sensor devices for the operation in liquid environments », *Proc. IEEE Ultrasonic symposium*, pp. 375-379, (1997)

#### REFERENCES DU CHAPITRE V

- [V-1] C. Cazaubon, H. Lévi, C. Bordieu, D. Rebière, J.Pistré, « Système multicapteurs de détection, portable, utilisant la technique du fenêtrage temporel », *Revue d'Électricité et d'Électronique*, n°3, p.55-58 (1999).
- [V-2] C. Zimmermann, « Conception, réalisation et étude de microcapteurs à ondes de Love pour applications en milieu gazeux. Cas de la propagation de composés organophosphorés », Thèse de doctorat n° 2471, Université Bordeaux 1, (2001)
- [V-3] F. Josse, F. Bender, R. W. Cernosek, « Guided Shear Horizontal Surface Acoustic Wave Sensors for Chemical and Biochemical Detection in Liquids », *Anal. Chem.*, 73(24), pp. 5937-5944, (2001)
- [V-4] G.L. Harding, J. Du, P.R. Dencher, D. Barnett, E. Howe, « Love acoustic immunosensors operating in liquid », *Sens. & Act. A*, 61, pp. 279-286, (1997)
- [V-5] E. Uttenthaler, M. Schräml, J. Mandel, S. Drost, « Ultrasensitive quartz crystal microbalance sensors for detection of M13-Phages in liquids » *Biosensors & Bioelectronics* 16, pp. 735-743, (2001)





**BIBLIOGRAPHIE DES ANNEXES**



**Références de l'annexe A.**

- [A-1] D. Rebière, « Capteurs à ondes acoustiques de surface. Application à la détection des gaz », Thèse de doctorat n°826, Université Bordeaux 1, (1992)
- [A-2] M. Feldmann, J. Hennaf, « Traitement du signal par ondes élastiques de surface », Collection technique et scientifique des télécommunications, Edition Masson (1986)
- [A-3] J. Kondoh, S. Shiokawa, « New application of shear horizontal surface acoustic wave sensors to identifying fruit juices », Jpn. J. Appl. Phys. Vol.33, part 1 N° 5B, pp 3095-3099, (1994)
- [A-4] S.J. Martin, A.J. Ricco, T.M. Niemczyk, G.C. Frye, « Characterization of SH acoustic plate mode sensors », Sens. & Act., 20, pp. 253-268, (1989)
- [A-5] R. Dahint, R. Ros Seigel, P. Harder, F. Josse, « Detection of non-specific protein at artificial surfaces by the use of acoustic plate mode sensors », Sens. & Act. B 35-36, pp. 497-505, (1996)
- [A-6] Esteban, « Etude et intégration de capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux (SH-APM). Application à la détection de gaz organophosphorés. », Thèse de doctorat n° 2030, Université Bordeaux 1, (1999)
- [A-7] C. Déjous, « Capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux. Application à la détection en milieux liquides et gazeux », Thèse de doctorat n° 1204, Université Bordeaux 1, (1994)
- [A-8] D. Royer, E. Dieulesaint, « Ondes élastiques dans les solides », Tome 1, "propagation libre et guidée", Ed. Masson, Paris, (1996)
- [A-9] D.S. Ballantine, S.J. Martin, A.J. Ricco, G.C. Frye, H. Wohltjen, R.M. White, E.T. Zellers, « Acoustic Wave Sensor Theory, Design, and Physico-Chemical Applications ». Academic press, San Diego, (1997)

### Références de l'annexe B

- [B-1] D. Royer, E. Dieulesaint, « Ondes élastiques dans les solides », Tome 1, "propagation libre et guidée", Ed. Masson, Paris, (1996)
- [B-2] D. Rebière, « Capteurs à ondes acoustiques de surface. Application à la détection des gaz », Thèse de doctorat n°826, Université Bordeaux 1, (1992)

### Références de l'annexe C

- [C-1] Slobodnik, « Acoustic wave handbook », Ed. Masson, (1973)
- [C-2] Slobodnik, « Microwave acoustics », Handbook, Bechmann, 58, (1973)
- [C-3] D.W. Van krevelen, « Properties of polymers », p. 374, Elsevier, (1990)
- [C-4] Techniques de l'ingénieur, constantes physico-chimiques, k 480
- [C-5] V. Wolf, M. G. Brown, P. G. Prentiss « Concentrative properties of aqueous solutions : conversion tables » Handbook of Chemistry and Physics 69<sup>th</sup> Edition, CRC press, (1988-1989).

### Références de l'annexe D

- [D-1] Z.A. Shana, « Theoretical analysis of the piezoelectric crystal/liquid interface for liquid-phase-based sensor applications », PhD dissertation, Marquette University, USA, (1991)

**Références de l'annexe E**

- [E-1] J.C. Andle, « An experimental and theoretical analysis of acoustic plate mode devices for biosensor applications », Thèse, Université de Maine (USA), (1993)
- [E-2] Esteban, « Etude et intégration de capteurs acoustiques à modes de plaque transverses horizontaux (SH-APM). Application à la détection de gaz organophosphorés. », Thèse de doctorat n° 2030, Université Bordeaux 1, (1999)







**Liste des Articles, communications et  
rapports publiés sur ces travaux**



***Publication dans une revue***

1. O. Tamarin, C. Déjous, D. Rebière, J Pistré, D. Moynet, J. Bezian, S. Comeau  
« Study of Acoustic Love Wave Devices For Real Time Bacteriophage Detection ».  
Accepté à Sensors & Actuators.
2. O. Tamarin, S. Comeau, D. Moynet, C. Déjous, D. Rebière, J. Bezian, J Pistré  
« Real Time Device For Biosensing: Design Of A Bacteriophage Model Using Love  
Acoustic Waves ».  
Accepté à Biosensors & Bioelectronics.

***F.3. Communications dans des congrès avec actes***

1. C. DEJOUS, J.PISTRE, D. REBIERE, O. TAMARIN, C. ZIMMERMANN, C. CAZAUBON  
« Système multicapteur utilisant des dispositifs à ondes acoustiques pour la détection  
d'espèces (bio)chimiques ».  
Proc. Forum ADEMIS (Association pour le développement des Microtechnologies et  
l'Intégration des Systèmes), Semaine des Micro- et Nanotechnologies, Paris, 16-19  
novembre 1999, p.67-71.
2. O. TAMARIN, C. DÉJOUS, D. REBIÈRE, C. ZIMMERMANN, J.PISTRÉ  
« Love wave acoustic devices : potentialities for biological media ».  
Envirobiosens, Cargèse - F, 14-17 mai 2000.
3. C. ZIMMERMANN, O. TAMARIN, D. REBIÈRE, C. DÉJOUS, J.PISTRÉ, R. PLANADE  
« Vapor Detection with Polysiloxane Coated Love-wave Devices. Influence of Thin Film  
Viscoelastic Properties: Sensitivity Analysis ».  
Proc. IEEE International Ultrasonics Symposium, Puerto Rico, 22-25 octobre 2000.vol.1,  
p.467-470.
4. O. TAMARIN, C. ZIMMERMANN, C. DÉJOUS, D. REBIÈRE, J.PISTRÉ  
« Dispositifs à ondes de Love pour la détection d'espèces chimiques ou biochimiques ».  
Proc. Colloque Interdisciplinaire en Instrumentation (C2I), Paris - F, 31 janv.-1<sup>er</sup> fév.  
2001, vol.2, p.55-62.

5. O. TAMARIN, C. DEJOUS, D. REBIERE, J. PISTRE  
« Simple Analytical Method To Estimate The Influence Of Liquids Viscosity On Love Wave Chemical Sensors ».  
Proc. IEEE International Ultrasonics Symposium, Atlanta, USA, 7-10 octobre 2001.
6. O. TAMARIN, S. COMEAU, D. MOYNET, C. DÉJOUS, D. REBIÈRE, J. BEZIAN, J PISTRÉ  
« Real Time Device For Biosensing: Design Of A Bacteriophage Model Using Love Acoustic Waves ».  
Biosensors 2002 – Kyoto, Japan, 15-17 Mai 2002.
7. O. TAMARIN, C. DEJOUS, D. REBIERE, J PISTRE, D. MOYNET, J. BEZIAN, S. COMEAU  
« Use of Love Wave Devices for Biosensing: Effect of Antibody-Bacteriophage Grafting on the Acoustic Wave Propagation ».  
9<sup>th</sup> International Meeting on Chemical Sensors, Boston, USA, 7-10 juillet 2002.

#### ***F.4. Communications dans des congrès sans actes, Séminaires***

1. J.PISTRÉ, C. DÉJOUS, D. REBIÈRE, C. ZIMMERMANN, O. TAMARIN  
« Capteurs d'espèces (bio)chimiques à ondes acoustiques ».  
9<sup>e</sup> International Metrology Congress, Bordeaux - F, 18-21 octobre 1999.
2. C. DEJOUS, D. REBIERE, J.PISTRE, C. ZIMMERMANN, O. TAMARIN  
« Les ondes de Love : vers un microsystème de détection de traces en temps réel ».  
Journées Micro et Nano Technologies 2000, Paris, 8-11 novembre 2000.
3. O. TAMARIN  
« Les ondes de Love : un microsystème pour la détection d'espèces chimiques ».  
Minatec 2001, Grenoble - F, 2-6 avril 2001.
4. O. TAMARIN  
« Immunocapteurs à ondes acoustiques : un microsystème dédié à la détection de toxines ».  
JNRDM'01 (Journées Nationales du Réseau Doctoral de Microélectronique), Strasbourg - F, 25-26 avril 2001.

5. C. DÉJOURS, D. REBIÈRE, J.PISTRÉ, P. MAZEIN, O. TAMARIN, C. ZIMMERMANN  
« Un microdétecteur de traces en temps réel utilisant les ondes élastiques ».  
Journées Micro et Nanotechnologies 2001, Paris, 13-14 novembre 2001.
  
6. S. COMEAU, D. MOYNET, J. BEZIAN, (LIMP – Univ. Bordeaux 2)  
O. TAMARIN, C. DEJOURS, D. REBIERE, J.PISTRE, (Laboratoire IXL)  
« Etude d'un microcapteur à ondes de Love pour la détection temps réel de virus ».  
Colloque Scientifique (Les Techniques Innovantes en Matière de Mesures dans l'Eau),  
Pau - F, 22 mars 2002.

***Comptes rendus de contrat***

1. C. DÉJOURS, J. PISTRÉ, D. REBIÈRE, O. TAMARIN, C. ZIMMERMANN  
Marché DCE n°99.01.123.00.470.94.50/DGA/DCE/CEB, novembre 2000, février 2001,  
mai 2001, juillet 2001, novembre 2001.  
« Détection des agents chimiques à l'état de vapeur à l'aide de dispositifs à ondes  
élastiques : Dispositifs à ondes de Love, Dispositifs multicapteurs ».  
5 Rapports d'avancement des travaux.
  
2. C. DEJOURS, J. PISTRE, D. REBIERE, O. TAMARIN (Laboratoire IXL)  
J. BEZIAN, D. MOYNET (Laboratoire d'Immunologie Moléculaire - Univ. Victor Ségalen  
Bordeaux 2)  
2 Rapports d'avancement des travaux, mars 2000, mars 2001.  
« Étude et réalisation d'immunocapteurs à ondes acoustiques : application à la détection de  
toxines dans le domaine de la conchyliculture ».  
Projet Région Aquitaine.

---

## Etude de capteurs à ondes de Love pour applications en milieu liquide. Cas de la détection de bactériophages temps réel.

---

**Résumé :** L'objectif de ces travaux est de montrer la faisabilité d'un immunocapteur (biocapteur) dédié utilisant les ondes acoustiques de Love. Pour cela, une structure multicouche complète tenant compte d'un liquide, a permis de modéliser la propagation et simuler le capteur, notamment en estimant sa sensibilité à l'effet de masse. Puis un dispositif à ondes de Love a été réalisé et caractérisé expérimentalement en fonction des paramètres mécaniques et électriques d'un liquide de test. Les résultats ont permis de valider l'approche théorique générale.

Enfin, des expériences de détections biochimiques en milieu liquide ont été réalisées en utilisant les dispositifs à ondes de Love. Pour cela, un modèle immunologique permettant une interaction spécifique du type anticorps (couche sensible) – bactériophage (polluant) a été sélectionné et mis au point. Le suivi en temps réel avec une bonne sensibilité par le capteur des différentes étapes immunologiques a montré tout l'intérêt des capteurs acoustiques à ondes de Love par rapport aux méthodes de mesure classiques de la biochimie analytique.

**Mots clefs :** Ondes acoustiques    Ondes de Love    Résolution analytique et numérique  
Effet de masse    Biocapteur    Détection temps réel  
Immunocapteur

---

---

## Study of Love wave sensors for liquid medium applications. Case of bacteriophages real time detection

---

**Abstract:** The aim of this research work is to demonstrate the feasibility of specific (bio)chemical detection tests by using acoustic Love wave sensors. For that, a complete multilayered structure taking into account a liquid medium allowed to model the wave propagation and to simulate the sensor, particularly its mass loading effect sensitivity. Then a Love wave device was realized and experimentally characterized according to the mechanical and electrical characteristics of a test liquid. Results allowed to conclude on the validity of the theoretical approach.

Lastly, biochemical detection tests in liquid were undertaken with Love wave devices. An immunological model allowing a specific antibody (sensitive layer) - bacteriophage (pollutant) immunoreaction was proposed. The acoustic device allowed to monitor immunological steps in real time, with a good sensitivity. It allowed to show that Love wave sensors represent a very good alternative to traditional biochemistry measurements methods.

**Key words :** Acoustic waves    Love waves    Analytical and numerical resolution  
Mass loading effect    Biosensors    Real time detection test  
Immunosensor

---

**Discipline :** Electronique