

Identification du couplage électro-élastique à partir de mesures de champs régularisées par les conditions d'équilibre

C. FLAMMIER^a, Y. FEDALA^{b,c}, F. KANOUI^c, G. TESSIER^b, JP. ROGER^b, F. AMIOT^a

a. Institut FEMTO-ST, CNRS-UMR 6174 / UFC / ENSMM / UTBM, 24 rue de l'épître 25030 BESANCON

b. Institut LANGEVIN, CNRS-UMR 7587 / ESPCI ParisTech, 10 rue Vauquelin, 75231 PARIS Cedex 05

c. PECSA, CNRS-UMR 7195 / ESPCI ParisTech, 10 rue Vauquelin, 75231 PARIS Cedex 05

Résumé :

Les capteurs micromécaniques présentent de grands intérêts dans les domaines de la biologie et chimie. La mesure de flexion du capteur induite par l'adsorption de molécules est améliorée par l'activation électrochimique de celui-ci. On modélise ici le couplage électro-élastique par une couche virtuelle d'épaisseur très petite devant celle du levier et contrainte à se déformer avec celui-ci. Afin de déterminer les paramètres mécaniques de ce système une méthode d'identification et régularisation à partir de mesures de champs est proposée. Pour valider ceci une simulation par éléments finis est proposée.

Abstract:

The interest in micromechanical cantilever sensors for biological or chemical applications is increasing. Measurement of the sensor bending induced by molecular adsorption is improved by electrochemical actuation of the cantilever. The electro-elastic coupling is modelled herein by a thin virtual layer constrained to deform with the cantilever. The ratio of their thickness is assumed to tend to zero. To determine the system's mechanical parameters an identification method and regularization from full field measurements is proposed. To confirm this a finite elements simulation is proposed.

Mots clefs : mesures de champs, identification, micro-levier, régularisation

1 Introduction

La miniaturisation des objets augmente grandement leur rapport surface sur volume. Ceci les rend beaucoup plus sensibles aux modifications de leur environnement et présente donc un avantage pour la détection de molécules. Les micro-leviers sont très souvent utilisés comme capteurs pour ce type d'application. Deux types de détections existent avec les micro-leviers, l'une se fait en dynamique et l'autre en statique [1]. En méthode dynamique la fréquence de résonance du capteur est relevée et permet de mesurer les variations de masses induites par l'adsorption de molécules [2]. Cependant celle-ci n'est pas adaptée pour les opérations en solution aqueuse à cause de l'amortissement qui est trop important [1]. En méthode quasi-statique on s'intéresse à la flexion induite par l'adsorption de molécules et les modifications environnementales du micro-levier. Le déplacement hors plan de l'extrémité du capteur est mesurable par la méthode du levier optique et est utilisée pour la détection d'ADN par hybridation [3]. Cependant ce déplacement est très faible et difficile à mesurer.

Afin d'accentuer ce déplacement, une méthode consiste à utiliser le micro-levier à la fois en tant que capteur et électrode en solution d'électrolyte. Cette méthode présente en plus l'avantage d'examiner les modifications chimiques à sa surface en même temps que son déplacement est mesuré. De nombreuses études s'intéressent aux réactions d'oxydoréductions entre l'électrode et la solution afin de comprendre quels sont les mécanismes responsables de la flexion du levier lors de l'adsorption de molécules [4-5]. La surface du levier est souvent fonctionnalisée. Pour permettre une bonne fonctionnalisation et une bonne conduction, le levier est recouvert d'or. Cependant dans ce cas il est difficile de distinguer la part de flexion due aux modifications de volume de la couche de polymère fonctionnalisé de la part due à l'interaction des ions avec l'or. De récents essais [6] ont montré qu'il est possible d'identifier des molécules en se plaçant dans des intervalles de potentiels où il n'y a pas de réaction d'oxydoréduction. Ceux-ci montrent une meilleure

reproductibilité des mesures mais sont qualitatifs. [7] montre qu'on peut travailler aussi dans des intervalles de potentiels où il n'y a pas d'oxydoréduction pour observer le déplacement d'une poutre plutôt que d'attendre la flexion de celle-ci par fonctionnalisation qui est longue.

Le microscope à longueurs d'ondes multiples permet de faire des mesures de champs sur les capteurs. Il fournit deux mesures, l'une, dépendante de la longueur d'onde, décrit les modifications chimiques à la surface du levier, et l'autre, indépendante de la longueur d'onde, décrit le champ de rotation de la surface du capteur [8].

On choisit ici de modéliser les effets chimiques induits par l'activation électrochimique du micro-levier par une fine couche virtuelle, d'épaisseur très faible devant celle du levier, contrainte à se déformer avec celui-ci [9]. Les conditions d'équilibre et de continuité à l'interface entre le levier et la couche virtuelle donnent un système d'équations dont la résolution permet de remonter aux paramètres mécaniques équivalents de la couche virtuelle.

La modélisation mécanique de ce couplage électro-élastique est présentée en première partie. Ensuite les mesures obtenues expérimentalement sont régularisées et utilisées pour résoudre le problème inverse afin de déterminer les paramètres mécaniques de la couche virtuelle. Enfin une modélisation par éléments finis du modèle est proposée afin de valider la procédure d'identification de ces paramètres.

2 Modélisation mécanique du couplage

Les micro-leviers utilisés ici font 70 μm de longueur, 20 μm de largeur et 0.84 μm d'épaisseur. Cette dernière est décomposée en 0.77 μm de silice recouvert de 20 nm de titane et 50 nm d'or. Ainsi la couche d'or sert d'électrode de travail dans une cellule fluide contenant une solution de KCl de 10^{-2} mol.L⁻¹ et deux autres électrodes, une électrode de référence en Ag/AgCl et une contre-électrode en platine. Le potentiel appliqué entre l'électrode de référence et le levier est contrôlé avec un potentiostat qui permet aussi de mesurer le courant passant à travers l'électrode.

Le levier est supposé être une poutre d'Euler Bernoulli, ainsi $r(x) = \frac{dw}{dx}$ où $w(x)$ est le déplacement hors plan du levier et $r(x)$ la rotation d'une section de la poutre. Les effets mécaniques induits par l'activation électrochimique sont décrits par une fine couche virtuelle d'épaisseur e_l (FIG. 1) et de module d'Young E_l . Celle-ci est contrainte à se déformer avec le levier [9] d'épaisseur e_c , de module d'Young E_c et de longueur l . $\frac{e_l}{e_c}$ est supposé très petit.

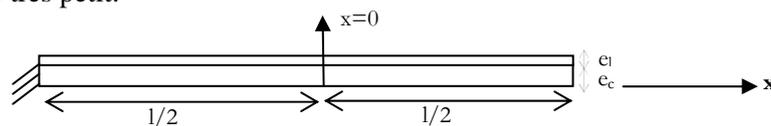


FIG. 1 – Modélisation du système

De plus cette couche virtuelle est soumise à un champ de déformation libre $\varepsilon_L(x)$. Le système n'étant soumis à aucun autre effort, il est supposé à l'équilibre, ainsi le champ de contraintes de cisaillement $\tau(x)$ entre le levier et la couche virtuelle respecte la condition d'équilibre :

$$\int_{-1/2}^{1/2} \tau(x) dx = 0 \quad (1)$$

L'objectif ici est la détermination des paramètres mécaniques de la couche virtuelle (e_l , E_l) et de $\varepsilon_L(x)$.

3 Mesures et régularisation

Les effets chimiques et mécaniques dus à l'application du potentiel sont observés ici avec un microscope à longueurs d'ondes multiples afin d'obtenir des mesures de champs [8]. Ce système permet de distinguer les contributions dépendantes et indépendantes de la longueur d'onde et donc de découpler les effets mécaniques et chimiques. Deux champs de réflectivité sont ainsi obtenus : le champ $R_{wi}(x)$,

indépendant de la longueur d'onde, permet de remonter à la rotation $r(x)$. Celle-ci décrit la déformation du capteur. Le champ $R_{wd}(x)$ décrit les modifications chimiques à la surface du levier. La réflectivité de celui-ci est dépendante de la longueur d'onde et le champ est supposé linéairement dépendant de la charge électrique. Cette dernière est obtenue en intégrant le courant passant à travers l'électrode. On suppose ici $\varepsilon_L(x) = F \cdot R_{wd}(x)$ où F est une constante.

Ces mesures sont moyennées sur la largeur du capteur afin d'éliminer une partie du bruit et de les utiliser pour une étude en une dimension du système. De plus, afin de réduire le bruit du champ de rotation, les mesures sont projetées sur une base de polynômes de Legendre :

$$r_L(x, K) = \sum_{k=0}^K r_k P_k\left(\frac{2x}{l}\right) \quad (2)$$

où K est le nombre maximal de polynômes sur lesquels est effectuée la projection. Les coefficients r_k sont obtenus par minimisation de la fonction $\int_x (r(x) - r_L(x, K))^2 dx$. De plus, afin de respecter la condition d'équilibre (1), un multiplicateur de Lagrange est ajouté lors de cette minimisation. Le nombre maximum de polynômes de Legendre K doit être suffisamment petit pour réduire le bruit mais aussi suffisamment élevé pour conserver un maximum de données.

Pour déterminer le nombre optimal de polynômes, une fonction test $r_t(x)$ est créée à partir des premiers termes de projection r_k . Un bruit Gaussien aléatoire de l'ordre de grandeur du niveau de bruit des mesures est ensuite ajouté à cette fonction pour créer différentes fonctions avec du bruit $r_n(x)$. Ces fonctions sont projetées sur des bases de polynômes de Legendre, $r_p(x)$, en faisant varier K , puis comparées à la fonction test par un calcul de résidu défini par :

$$\chi^2(K) = \frac{\langle \sum_x (r_p(x, K) - r_t(x))^2 \rangle}{\sum_x r_t(x)^2} \quad (3)$$

où $\langle \rangle$ est la moyenne sur le nombre de fonctions avec bruit. Le nombre optimal de polynômes de Legendre $K_{optimal}$ correspond au résidu minimum, comme sur la FIG. 2 ci-dessous.

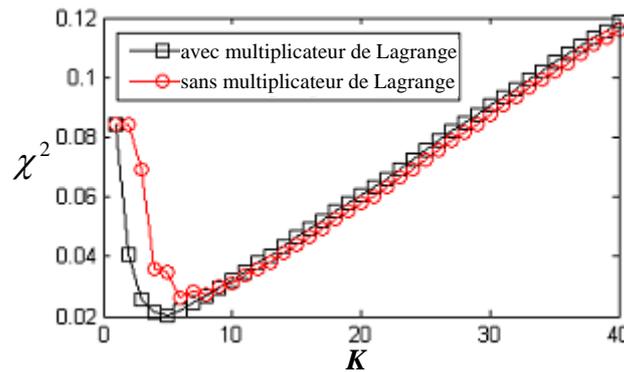


FIG. 2 – Choix de $K_{optimal}$

L'ajout de la contrainte d'équilibre augmente le $K_{optimal}$ avec un résidu minimum restant du même ordre de grandeur, il y a donc plus d'informations disponibles. Une fois $K_{optimal}$ déterminé le champ de rotation est projeté sur ce nombre optimal de polynômes comme dans FIG. 4.

Le potentiel est appliqué à une vitesse de $4\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$. La poutre fléchit avec la tension appliquée. On peut voir la dépendance entre le champ de rotation et la charge de l'électrode.

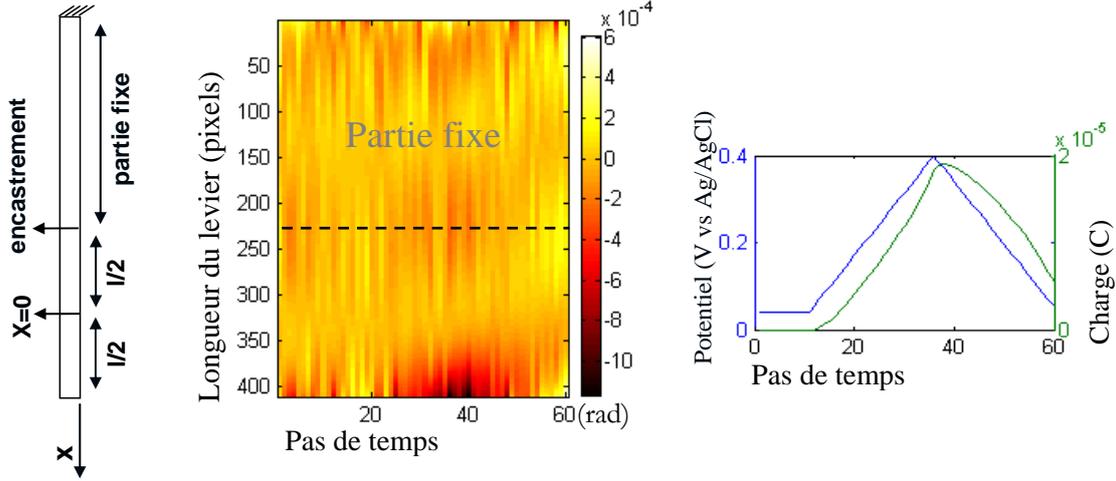


FIG. 4 – Champ de rotation projeté et densité de charge de l'électrode

4 Identification des paramètres mécaniques

A partir des conditions d'équilibre et de compatibilité cinématiques à l'interface :

$$\frac{dN_l}{dx} = b.\tau(x) \quad \text{et} \quad u_l(x) - u_l\left(-\frac{l}{2}\right) = u_c(x) - u_c\left(-\frac{l}{2}\right) \quad (4)$$

où N_l est l'effort généralisé de tension de la couche virtuelle et u_l et u_c les déplacements respectifs de la couche virtuelle et du levier suivant l'axe x à l'interface, et avec les hypothèses et conditions d'équilibre définies à l'interface (1), le système $M.X=B$ ci-dessous est vérifié pour chaque pixel le long de la poutre mais aussi pour chaque pas de temps (ie pour chaque densité surfacique de charge) :

$$\begin{bmatrix} \int_{-l/2}^{l/2} R_{wd}(\eta) d\eta & \int_{-l/2}^{l/2} \int_{-l/2}^{\eta} \frac{d^3 w_c(\eta)}{d\eta^3} d\xi d\eta \\ \vdots & \vdots \\ \int_{-l/2}^x R_{wd}(\eta) d\eta & \int_{-l/2}^x \int_{-l/2}^{\eta} \frac{d^3 w_c(\eta)}{d\eta^3} d\xi d\eta \\ \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots \end{bmatrix} \begin{bmatrix} F \\ \frac{e_c}{6} \left(1 + \frac{e_c E_c}{e_l E_l} \right) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{e_c}{2} \int_{-l/2}^{l/2} \frac{d^2 w_c(\eta)}{d\eta^2} d\eta \\ \vdots \\ -\frac{e_c}{2} \int_{-l/2}^x \frac{d^2 w_c(\eta)}{d\eta^2} d\eta \\ \vdots \\ \vdots \end{bmatrix} \quad (5)$$

Celui-ci est donc surdéterminé et sa résolution permet de remonter aux paramètres mécaniques de la couche virtuelle et au champ de déformations libres $\varepsilon_L(x) = F.R_{wd}(x)$. Une résolution au sens des moindres carrés

donne ici $F = -0.0013$ (sans dimension) et $\frac{e_c}{6} \left(1 + \frac{e_c E_c}{e_l E_l} \right) = 0.021 \mu\text{m}$, ce qui est cohérent puisque le deuxième

terme est positif. Le résidu est de 0.67, ce qui est élevé mais s'explique par le fait que pour normaliser le résidu on divise celui-ci par le terme B du système $MX=B$ qui est le terme d'ordre de grandeur le plus petit du système et est donc du même ordre de grandeur que $MX=B$ alors que la matrice M est d'un ordre de grandeur bien plus élevée que la matrice B (environ 10 fois). Le champ de contraintes à l'interface entre la poutre et la couche virtuelle est aussi obtenu avec la résolution de ce système. La FIG. 4 montre le tracé de ce champ pour une valeur de la densité de charge correspondant au pas de temps 40.

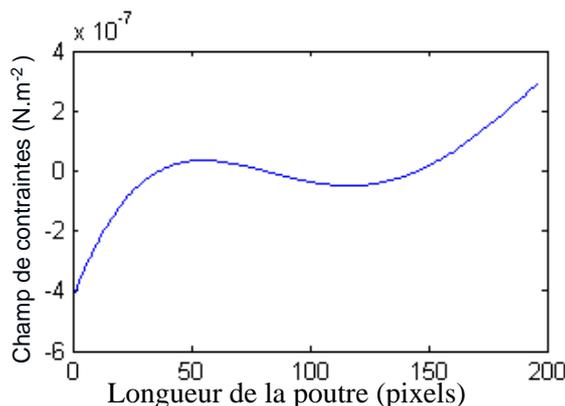


FIG. 3 – Champ de contraintes à l'interface

Celui-ci est équilibré, ce qui n'est pas vérifié sans l'utilisation du multiplicateur de Lagrange.

5 Validation par simulations numériques

Afin de valider le modèle et les hypothèses associées à celui-ci, une simulation par éléments finis est proposée. L'objectif est de modéliser la poutre avec une couche virtuelle dont on connaît les paramètres (épaisseur et module d'Young) que l'on soumet à des déformations libres connues. Le champ de déplacement hors plan de celle-ci est ensuite relevé, puis introduit dans (4) afin de voir si l'on retrouve bien les paramètres donnés en entrée. La poutre est modélisée en deux dimensions avec des éléments rectangles à 8 nœuds et à pour dimensions $70 \mu\text{m}$ de longueur et $0.84 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La couche virtuelle est modélisée avec les mêmes éléments de sorte que les nœuds à l'interface soient coïncidents, et a une épaisseur de 0.84 nm , ce qui donne un rapport d'épaisseurs de 10^{-3} . Les modules d'Young respectifs de la poutre et de la couche virtuelle sont de 124 GPa et 69 GPa . Le maillage est fait de façon à ce que les facteurs de forme des éléments, ie le rapport longueur sur hauteur des éléments, soient respectés (<20) et que la taille des éléments à l'interface soit du même ordre de grandeur. Pour simuler les déformations libres, le coefficient de dilatation thermique est imposé nul dans la poutre et à une valeur arbitraire de $3 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ dans la couche virtuelle, puis l'ensemble est soumis à une variation de température de 10° C . Ainsi la déformation de la poutre est due uniquement au déplacement imposé par la couche virtuelle et la modélisation proposée est bien respectée.

Le tracé du déplacement suivant l'axe de la poutre dans une section de celle-ci donne la FIG.5

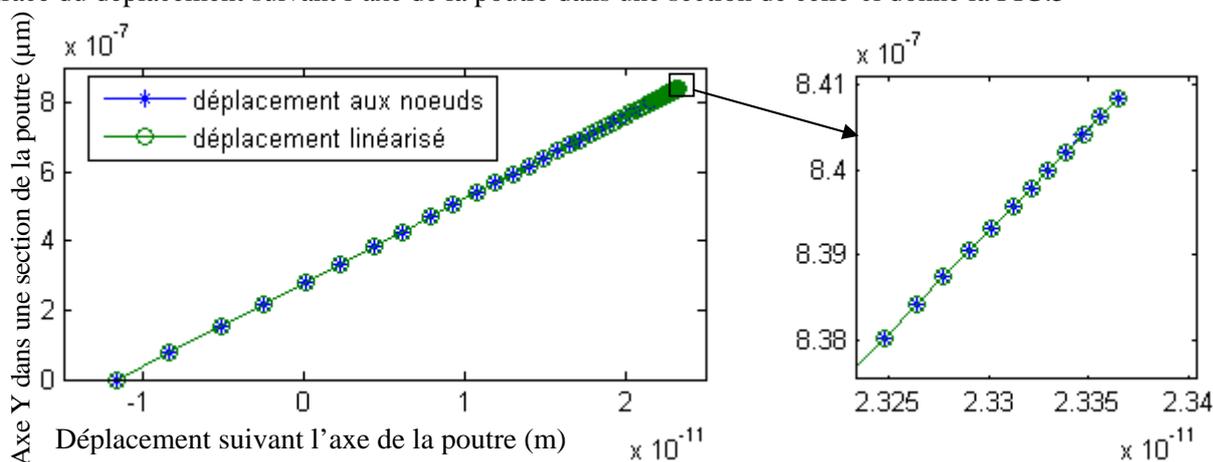


FIG. 5 – Déplacement et linéarisation de U_x dans une section de poutre au milieu de la poutre et agrandissement au niveau de l'interface

Il n'y a pas de discontinuité à l'interface (à $0.84 \mu\text{m}$) et la courbe obtenue est une droite. En effet, le résidu (défini de même que dans (3)) entre celle-ci et sa linéarisation est de $2.22 \cdot 10^{-10}$. En se plaçant à l'interface on trouve entre la courbe et sa linéarisation un écart de l'ordre de 0.0025% . La section de droite de la poutre reste donc bien plane et perpendiculaire à la courbe moyenne. La poutre a donc bien le comportement d'une poutre, ce qui correspond bien au modèle proposé et valide donc l'utilisation de celle-ci pour confirmer les résultats obtenus par éléments finis. Le champ de déplacement hors plan obtenu est cohérent avec [10]. Sa dérivée donne le champ de rotation qui est ensuite injecté dans le système surdéterminé et projeté sur le même nombre de polynômes de Legendre que le système expérimental. La résolution au sens des

moindres carrés donne ici $F=0.0017$ (sans dimension) et $\frac{e_c}{6} \left(1 + \frac{e_c E_c}{e_l E_l} \right) = 0.27 \mu\text{m}$, alors qu'en théorie on devrait obtenir $F=1$ et $\frac{e_c}{6} \left(1 + \frac{e_c E_c}{e_l E_l} \right) = 251 \mu\text{m}$. L'écart par rapport à ce que l'on devrait obtenir est de 99.8 %.

Ceci peut s'expliquer par le fait que sur les bords de la poutre on s'éloigne des conditions souhaitées et que ceci a une forte influence sur le système (5). En effet, si on observe le résidu du système défini par $MX-B$ le long de la poutre on observe que le résidu est plus important sur les bords (FIG. 6). Cet effet est encore plus accentué lorsqu'on augmente le nombre de polynômes de Legendre sur lequel on projette le champ de déplacements (FIG.6).

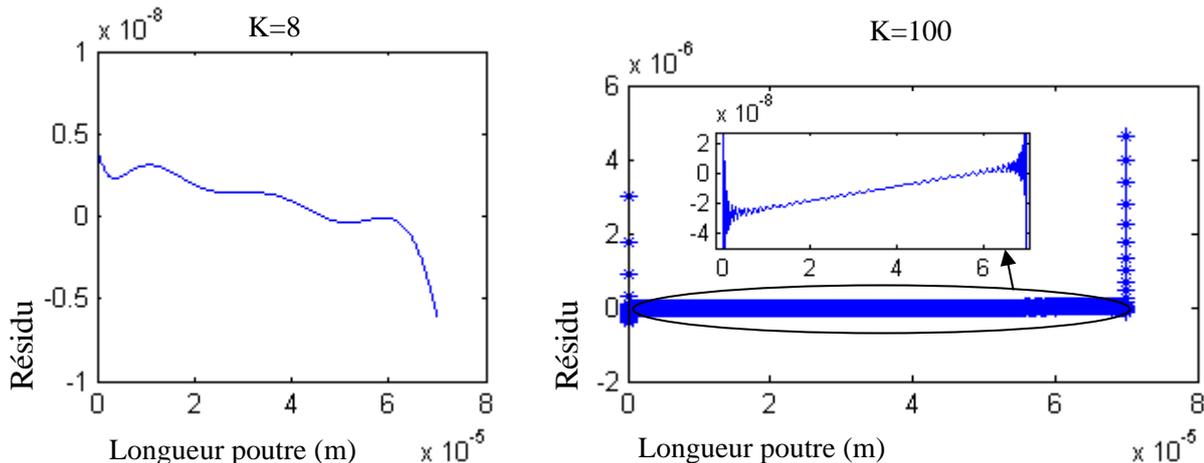


FIG. 6 – Résidu $MX-B$ pour $K=8$ et $K=100$

L'influence de ces effets de bord est donc à étudier.

6 Conclusions

La partie mécanique du couplage électro-élastique sur micro-levier est modélisée ici par une couche virtuelle d'épaisseur très fine et contrainte à se déformer avec le levier. L'utilisation de mesures de champs combinée avec les équations d'équilibre et de compatibilité cinématique à l'interface donne un système surdéterminé dont la résolution au sens des moindres carrés permet de remonter aux paramètres mécanique de la couche virtuelle et aux contraintes à l'interface entre la poutre et la couche virtuelle. Un modèle par éléments finis du système est aussi étudié afin de valider les résultats obtenus expérimentalement. Celui-ci ne donne pas les résultats attendus pour le moment, ce qui peut être expliqué par l'écart que l'on obtient entre les résultats obtenus par simulation numérique et le modèle poutre de Bernoulli. Une correction doit donc être apportée aux résultats obtenus par éléments finis pour valider les résultats expérimentaux.

References

- [1] K.M. Hansen, T. Thundat, *Methods*, 37, 57-64, 2005.
- [2] P. Burgese, E. Bontempi, M. Chiari, P. Colombi, F. Damin, L.E. Depero, G. Pirri, M. Zucca, *Applied Surface Science*, 253, 4226-4231, 2007.
- [3] J. Fritz, M.K. Baller, H.P. Lang, H. Rothuizen, P. Vettiger, E. Meyer, H.J. Güntherodt, Ch. Gerber, J.K. Gimzewski, *Science*, 288, 316-318, 2000.
- [4] H. Ibach, C.E. Bach, M. Giensen, A. Grossmann, *Surface Science*, 375, 107-119, 1997.
- [5] F. Quist, V. Tabard-Cossa, A. Badia, *J. Phys. Chem. B*, 107, 10691-10695, 2003.
- [6] D. Lee, T. Thundat, S. Jeon, *Sensors and Actuators B*, 107, 143-146, 2007.
- [7] F. Amiot, F. Hild, F. Kanoufi, J.P. Roger, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 40, 3314-3325, 2007.
- [8] N. Garraud, Y. Fedala, F. Kanoufi, G. Tessier, J.P. Roger, F. Amiot, *Optics Letters*, 36 (4), 594-596, 2011.
- [9] F. Amiot, *JoMMS*(2), 9, 1787-1803, 2007.
- [10] E. Suhir, *Journal of Applied Mechanics*, 53, 657-660, 1986.