

**AIX-MARSEILLE UNIVERSITÉ**  
ECOLE DOCTORALE 353  
IRPHE/UMR 7342

Thèse présentée pour obtenir le grade universitaire de docteur

Discipline : Sciences pour l'ingénieur  
Spécialité : Mécanique et Physique des Fluides

**Maximilien DEGONVILLE**

**Étude numérique de la dynamique sous écoulement de gouttes et  
vésicules avec viscosités de surface**

Numerical study of the dynamics of droplets and vesicles with surface  
viscosities under flow

Soutenue le 21/12/2018 devant le jury composé de :

Chaouqi MISBAH	CNRS/LIPhy	Rapporteur
Hugues BODIGUEL	INP ENSE3/LRP	Rapporteur
Emmanuelle RIO	Paris Sud/LPS	Examineur
Marc JAEGER	Centrale Marseille/M2P2	Examineur
Marc LEONETTI	CNRS/LRP	Directeur de thèse
Gwenn BOEDEC	Aix-Marseille Université/IRPHE	Directeur de thèse

# Résumé

De nombreux systèmes fluides dans les domaines de la biologie, de l'agro-alimentaire, de la pharmacologie ou encore de la cosmétique sont limités par une interface dont les propriétés mécaniques régissent la stabilité de ces systèmes. En particulier, les objets tels que des gouttes, vésicules ou polymersomes se déforment dans un écoulement simple et mènent à une grande richesse de dynamiques spatio-temporelles. Ces propriétés sont contrôlées par la nature des matériaux qui composent l'interface : monocouche de surfactants, bicouche formée de lipides ou de copolymères.

Les travaux présentés concernent l'étude numérique de la déformation (dynamique, transition, état stationnaire) de gouttes, vésicules et polymersomes dans un écoulement de Stokes, en particulier dans des situations où les viscosités de l'interface jouent un rôle important. Un code de calcul couplant intégrales de frontières et éléments finis a été utilisé afin de décrire la physique interfaciale de ces objets et étudier leur comportement une fois plongés dans un écoulement. Dans cette optique, différentes stratégies de résolution numérique ont été développées pour optimiser les calculs dans le cas d'une interface avec viscosités.

Ces travaux ont permis d'étudier l'influence des viscosités interfaciales sur la dynamique d'une goutte dans un écoulement extensionnel plan : en particulier, leur influence sur la dynamique de déformation d'une goutte et sur les conditions de rupture de celle-ci a été caractérisée.

Les études réalisées sur une vésicule, goutte enrobée d'une bicouche lipidique, fortement dégonflée et plongée dans un écoulement cisailé ont caractérisé la bifurcation entre les deux familles de forme existantes dans ces conditions. Ces formes ayant une influence sur la dynamique de la vésicule dans l'écoulement, celle-ci a été étudiée dans le cadre d'un écoulement infini puis proche d'une paroi parallèle à l'écoulement.

Enfin, de premiers résultats sur la dynamique d'un polymersome dans un écoulement cisailé permettent de construire un diagramme de phase illustrant les différents comportements de cet objet en fonction de la viscosité de la membrane et du taux de cisaillement.

Mots clés : vésicules, gouttes, viscosité de surface, écoulement de Stokes, simulation numérique, intégrales de frontière

# Abstract

There are many fluid systems in the biology, food industry, pharmacology or cosmetics fields that are bound by an interface which mechanical properties rule the system stability. Objects like droplets, vesicles or polymersomes change their shape in a simple flow which lead to a wealth of space and time dynamics. These properties are controlled by the nature of the interface material : monolayer of surfactants, lipid or co-polymers bilayer.

The aim of this work is the numerical study of the deformation (dynamics, transition, steady state) of droplets, vesicles and polymersomes in a Stokes flow, especially when the interfacial viscosities play an important role. A numerical computation code coupling boundary integrals and finite elements was used to describe the interfacial physics of these objects and study their behaviour when immersed in a flow. Multiple resolution strategies were developed to this end in order to optimize the numerical computation in the case of an interface with viscosities.

Using this work, the influence of interfacial viscosities on the dynamics of a droplet in an extensional flow is studied : in particular, their influence on the stretching dynamics of a droplet and its breakup conditions was characterized. The study of a vesicle, droplet bounded by a lipid bilayer, strongly deflated and immersed in a shear flow detailed the bifurcation between two shape types existing for this system. These shapes have an influence on the vesicle dynamics under flow, which is studied for an unbounded flow and a near-wall flow. Finally, we show first results about the dynamics of a polymersome in a shear flow. We used them to build a phase diagram for the behaviour of this object depending on the membrane viscosity and the shear rate.

Keywords: vesicles, droplets, surface viscosity, Stokes flow, numerical simulation, boundary integral method

# Remerciements

Toute lectrice et tout lecteur qui a réalisé un travail de thèse ou qui connaît une personne dans ce cas saura qu'il est impossible de mener ce projet sans le soutien de son entourage, professionnel ou non.

Pour commencer, je tiens à dire le plus grand des merci à Marc Leonetti et Gwenn Boëdec pour leur accompagnement dans ce domaine de la mécanique des fluides totalement nouveau pour moi dès mon arrivée à Marseille, pour leurs conseils avisés, leur écoute et la grande patience qu'ils ont manifesté jusqu'aux derniers instants. Je les remercie d'autant plus chaleureusement qu'ils ont compris l'importance qu'avaient pour moi mes nouveaux engagements personnels tout au long de la durée de ma thèse, qu'ils soient scientifiques ou non.

J'aimerais remercier Chaouqi Misbah et Hugues Bodiguel d'avoir accepté la relecture de ce document. Je remercie également Emmanuelle Rio et Marc Jaeger pour leur participation au jury de la soutenance de ma thèse.

Je souhaite de plus adresser mes remerciements la région Sud - Provence-Alpes-Côte d'Azur qui, aux côtés de l'INSIS, a financé mes travaux de recherche et m'a permis de découvrir la richesse de la vulgarisation scientifique.

Merci au personnel administratif de l'école doctorale 353 et de l'IRPHE pour leur soutien dans toutes les démarches, réinscriptions et missions à déclarer mais également pour leur soutien moral, leurs citations pleines de philosophie et leur bonne humeur.

J'en profite pour également remercier les doctorantes et doctorants de l'IRPHE qui ont rendu ces années de recherche conviviales et pleines d'expériences. Merci tout particulièrement à Guillaume Martrou avec qui le partage de bureau est devenu un partage d'informations plus diverses que je n'aurais jamais pu imaginer !

Parce que la thèse se vit aussi à l'extérieur du laboratoire et que tout entourage de doctorant peut le confirmer, j'aimerais évidemment remercier Lilian Rivière, Hugo Agostini, Ali Dridi, Mickaël Bruno et Adrien Bihouée pour les moments fous passés ensemble quels que soient mon humeur et mon état nerveux.

Enfin, je n'oublie pas ma famille et évidemment mes parents, Brigitte et Didier, qui m'ont soutenu depuis le premier jour de mes études supérieures à l'ESSTIN, à Nancy, jusqu'au point final de ce manuscrit.

# Table des matières

<b>Résumé</b>	<b>2</b>
<b>Abstract</b>	<b>3</b>
<b>Remerciements</b>	<b>4</b>
<b>Table des matières</b>	<b>5</b>
<b>Table des figures</b>	<b>8</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>16</b>
<b>Introduction</b>	<b>19</b>
<b>1 Définition des systèmes étudiés</b>	<b>20</b>
1.1 Objets déformables dans un écoulement de Stokes . . . . .	20
1.1.1 Fluides complexes et matière molle . . . . .	20
1.1.2 Écoulements de Stokes . . . . .	24
1.1.3 Propriétés des écoulements de Stokes . . . . .	26
1.2 La goutte : définition et dynamique . . . . .	28
1.2.1 Propriétés de l'interface . . . . .	28
1.2.2 État de l'art . . . . .	30
1.3 La vésicule : définition et dynamique . . . . .	32
1.3.1 Propriétés membranaires . . . . .	32
1.3.2 État de l'art . . . . .	36
1.3.3 Polymersome, particularités et influence sur la dynamique de la membrane . . . . .	40
<b>2 Méthodes numériques</b>	<b>43</b>
2.1 Suivi d'interface sous écoulement . . . . .	43
2.1.1 Modèles numériques usuels . . . . .	43
2.1.2 Intégrales de frontière . . . . .	46
2.2 Discrétisation de l'interface fluide . . . . .	49
2.2.1 Description de l'interface . . . . .	49
2.3 Calcul des forces interfaciales . . . . .	52
2.3.1 Forces interfaciales dépendant uniquement des propriétés géométriques . . . . .	53

2.3.2	Calcul des forces dépendant uniquement des propriétés géométriques . . . . .	55
2.3.3	Forces interfaciales dépendant du champ de vitesse local . . .	58
2.3.4	Outils numériques pour la résolution des systèmes linéaires . .	59
2.4	Schémas numériques . . . . .	62
2.4.1	Schémas temporels . . . . .	62
2.4.2	Intégration spatiale . . . . .	65
<b>3</b>	<b>Dynamique d'une goutte avec viscosités interfaciales sous écoulement</b>	<b>68</b>
3.1	Dynamique d'une goutte sous écoulement . . . . .	68
3.2	Déformation d'une goutte visqueuse sous écoulement extensionnel plan	73
3.2.1	Paramètres de l'étude . . . . .	73
3.2.2	Phénoménologie . . . . .	74
3.3	Petites déformations : influence des viscosités interfaciales et comparaison avec la théorie de Flummerfelt. . . . .	77
3.4	Influence des viscosités interfaciales sur la dynamique d'approche ou de retour à l'équilibre . . . . .	82
3.5	Comparaison écoulement hyperbolique plan ou extensionnel axisymétrique . . . . .	86
3.6	Influence des viscosités interfaciales sur la stabilité de la goutte . . .	92
3.7	Conclusion - Perspectives . . . . .	95
<b>4</b>	<b>Transition de forme d'une vésicule sous écoulement</b>	<b>100</b>
4.1	Transition de forme d'une vésicule fortement dégonflée . . . . .	101
4.1.1	Formes d'équilibre d'une vésicule sans écoulement externe . . . . .	101
4.1.2	Transition de forme d'une vésicule fortement dégonflée . . . . .	103
4.1.3	Caractérisation de la transition de forme . . . . .	106
4.1.4	Évolution de la transition . . . . .	110
4.2	Dynamique de décollement sous écoulement cisailé . . . . .	111
4.2.1	Hypothèse de lubrification et décollement d'une vésicule sous écoulement . . . . .	111
4.2.2	Limites de la simulation en proche paroi . . . . .	115
4.2.3	Vitesse de décollement sous écoulement de Stokes . . . . .	118
4.2.4	Description du décollement à la paroi . . . . .	120
4.2.5	Évolution de la forme en proche paroi dans un écoulement de forte intensité . . . . .	123
4.3	Conclusion . . . . .	124
<b>5</b>	<b>Perspectives : dynamique d'un polymersome sous écoulement</b>	<b>125</b>
5.1	Introduction . . . . .	125
5.2	Modèle de Keller-Skalak . . . . .	127
5.3	Dynamique d'un polymersome faiblement dégonflé sous écoulement cisailé . . . . .	134

5.4	Dynamique d'un polymersome oblate à fort dégonflement de type globule rouge $v = 0.6$ . . . . .	142
5.5	Conclusion . . . . .	146
	<b>Conclusion</b>	<b>150</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>151</b>

# Table des figures

1.1	Différentes approches d'un écoulement sanguin. <b>A gauche</b> : Écoulement sanguin dans un canal microfluidique de diamètre $70 \mu\text{m}$ [Bur+12]. <b>A droite</b> : Suspension de globules rouges sous forme de disque (en haut), de parachute (au centre) ou de pantoufle (en bas) dans un écoulement de Poiseuille avec un diamètre de canal de $9.6 \mu\text{m}$ [FNG14]. . . . .	21
1.2	Composition de la membrane d'un globule rouge [VPM09]. . . . .	22
1.3	Représentation schématique de la composition d'une vésicule. De gauche à droite : une molécule phospholipidique, composée d'une tête hydrophile et de deux queues hydrophobes ; un élément de membrane composé de deux couches de phospholipides ; une vésicule sphérique. (Site de l'Institut d'Astrobiologie de la NASA) . . . . .	24
1.4	Sphère immergée dans un écoulement uniforme de vitesse $U$ à l'infini. <b>A gauche</b> : écoulement initial. <b>Au centre</b> : écoulement dont le sens des conditions limites a été inversé. <b>A droite</b> : écoulement symétrique par rapport au plan orthogonal au plan de l'écoulement. . . . .	28
1.5	Déformation d'une goutte sans surfactants avec $D$ le paramètre de Taylor et $\lambda = \eta_i/\eta_e$ le contraste de viscosité. Les données sont issues de [Gou+16] et sont comparées aux résultats $D_T$ de [Tay34] et $D_{Cox}$ de [Cox69]. . . . .	31
1.6	Champ de vitesse dans le plan $(x, y)$ à l'intérieur d'une goutte sphérique plongée dans un écoulement de Poiseuille et sans contraste de viscosité [Sch+11]. <b>(a)</b> : Pas de viscosité interfaciale. <b>(b)</b> : Viscosité interfaciale de cisaillement uniquement. <b>(c)</b> : Viscosité interfaciale de dilatation uniquement. On notera que la position des points de stagnation évoluent de manière opposée avec les viscosités de cisaillement et élongationnelle. . . . .	32
1.7	Différentes déformations possibles pour une surface à deux dimensions. <b>De gauche à droite</b> : extension, cisaillement et flexion (tiré de [EN87]). . . . .	33
1.8	<b>Droite</b> : Forme de minimum d'énergie de flexion global selon le modèle de Canham-Helfrich [SBL91]. <b>Gauche</b> : Diagramme des différentes branches de solution pour l'énergie de flexion d'une membrane de vésicule [SBL91]. $F^b$ correspond à l'énergie de flexion. . . . .	37

1.9	Dynamique d'une vésicule dans un écoulement cisailé. <b>(a)</b> Tank-treading. <b>(b)</b> Vacillating-breathing . <b>(c)</b> Tumbling. [DKS09] . . . . .	38
1.10	Diagramme de phase d'une vésicule de volume réduit $v = 0.943$ [KFM09]. . . . .	39
1.11	Vue d'artiste d'un polymersome, tiré de [LF12]. La partie bleue correspond à la la partie hydrophile du polymère, la partie rouge à la partie hydrophobe. . . . .	40
2.1	Décomposition de la fonction de Green associée à la présence d'une paroi en singularités images, de gauche à droite : Stokeslet, un doublet de Stokeslet et un dipôle de forces [C B77]. . . . .	48
2.2	Exemple de subdivision du maillage utilisé. <b>A gauche</b> : Création d'un nouveau noeud par subdivision. Les valeurs entre parenthèses sont les poids des coordonnées dans le calcul des coordonnées du nouveau noeud. <b>A droite</b> : Exemple de subdivision d'éléments, les notations correspondent au point $x_0$ et ses 6 plus proches voisins à chaque étape. [COS00]) . . . . .	51
2.3	Simulation d'une capsule dans un écoulement de cisaillement, montrant : (a) le maillage de contrôle qui définit les degrés de liberté de la simulation, composé ici de 80 éléments, (b) le maillage qui serait obtenu en appliquant une itération de subdivision de Loop, (c) la surface limite qui correspondrait à un nombre infini d'itérations de subdivision de Loop. Autour de cette surface limite est représenté le maillage de contrôle. En déplaçant les noeuds de ce maillage, on contrôle la forme de la surface limite. . . . .	52
2.4	Les coordonnées locales de chaque point localisé dans l'élément central (en rouge) sont exprimées en fonction du repère $(s^1, s^2)$ . Les fonctions de forme dépendent des noeuds de l'élément, ainsi que des noeuds des éléments reliés à cet élément par une arête [BLJ17]. . . . .	53
2.5	<b>A gauche</b> : nombre d'itérations moyennes pour atteindre le maximum de résidu imposé pour la méthode GMRES. Les courbes pleines sont avec préconditionneur, les courbes pointillées sans. <b>A droite</b> : Proportion du temps de calcul du préconditionneur par rapport au temps total d'une itération temporelle. . . . .	61
2.6	Intégration spatiale sur un élément triangulaire courbe, ici à 4 points de quadrature. <b>De gauche à droite</b> : Triangle rectangle de référence, triangle déformé de coordonnées locales $(s^1, s^2)$ et de métrique $g$ , triangle déformé avec points d'intégration de Gauss définis sur la surface courbe. . . . .	66

3.1	Déformation, relaxation et rupture d'une goutte initialement sphérique sous écoulement extensionnel avec $\lambda = \eta_e/\eta_i = 0.046$ [SBL86]. Cette situation illustre bien les différents aspects qui peuvent être étudiés : une goutte initialement sphérique est étirée par l'écoulement extensionnel, suivant la valeur des paramètres, la goutte atteint une forme stationnaire ou non. Lorsque l'écoulement est arrêté, la goutte relaxe en se rétractant, et en suivant un autre "chemin" que lors de l'étirement. Des instabilités qui n'étaient pas présentes dans le cas de l'extension peuvent alors apparaître et conduire à la rupture de la goutte. . . . .	71
3.2	Goutte initialement sphérique plongée dans un écoulement extensionnel plan (ou écoulement hyperbolique) . . . . .	73
3.3	Mécanisme de stabilisation d'une goutte dans un écoulement extensionnel. . . . .	74
3.4	Approximation géométrique simple d'une forme très étirée caractéristique des formes instationnaires (ici, $Ca = 0.2, \lambda = 11.3, \dot{\gamma}t \approx 4$ ) : la goutte est approximée par un cylindre de longueur $2L$ et de rayon $r$ , fermé par deux hémisphères. . . . .	75
3.5	Paramètre de Taylor en fonction du nombre capillaire pour un écoulement extensionnel axisymétrique uniaxe. Les simulations sont comparées aux résultats obtenus par [SL89] pour le cas axisymétrique. . . . .	76
3.6	Évolution des longueurs $L_1$ (trait plein), $L_2$ (trait mixte) et $L_3$ (trait pointillé) en fonction du temps de simulation adimensionné, pour $Ca = 0.1$ et une forme initialement sphérique. . . . .	77
3.7	Évolution du paramètre de Taylor $D_T$ en fonction du temps de simulation adimensionné, pour $Ca = 0.1$ et une forme initialement sphérique. . . . .	78
3.8	Déformation stationnaire $D_{t,\infty}$ de l'interface sous écoulement extensionnel plan pour $Ca = 0.1$ . . . . .	79
3.9	Evolution du paramètre de Taylor en fonction du nombre capillaire pour une goutte "propre" ( $Bq_s = Bq_d = 0$ ) : comparaison entre simulations numériques (symboles) et théorie linéaire de [Flu80b] (courbe). . . . .	80
3.10	$D_{t,\infty}$ en fonction de : (a) $Bq_s$ (b) $Bq_d$ , pour $Ca = 0.1$ , comparé à [Flu80a]. Les points représentent les simulations numériques, les courbes l'expression analytique de Flumerfelt. . . . .	80
3.11	$D_T/Ca$ pour $Bq_d = 0$ et différentes valeurs du nombre capillaire $Ca$ : pour une viscosité de cisaillement suffisamment importante, le paramètre de Taylor tend vers une valeur indépendante de $Bq_s$ . . . . .	81
3.12	Temps caractéristique de saturation de la forme $\tau_{sat}$ pour $Ca = 0.1$ , en fonction de : (a) $Bq_s$ et (b) $Bq_d$ . . . . .	82
3.13	Temps de saturation adimensionné $\dot{\gamma}\tau_{sat}$ à $\chi = Bq_d/Bq_s$ constant. . . . .	83

3.14	Evolution du coefficient directeur de la droite $\tau_{sat} \sim A\chi$ en fonction de $\chi$ . . . . .	84
3.15	Déformation stationnaire $D_{T,\infty}$ à $\chi = Bq_d/Bq_s$ constant. . . . .	84
3.16	Evolution du <b>(a)</b> paramètre de Taylor $D_{t,\infty}$ et <b>(b)</b> du temps caractéristique de saturation $\tau_{sat}$ pour $Bq = Bq_s = Bq_d$ . . . . .	85
3.17	Écoulements externes imposés. <b>A gauche</b> : écoulement extensionnel plan. <b>A droite</b> : écoulement extensionnel axisymétrique. . . . .	86
3.18	Dynamique d'une goutte sous écoulement extensionnel plan (trait plein) et extensionnel axisymétrique (trait pointillé), $Ca = 0.1$ et $Bq_s = Bq_d$ . <b>(a)</b> $D_{T,\infty}$ <b>(b)</b> $\tau_{sat}$ . . . . .	87
3.19	Déformation d'une goutte sous écoulement extensionnel plan (trait plein) et extensionnel axisymétrique (trait pointillé), $Ca = 0.1$ et $Bq_d = 0$ . . . . .	88
3.20	Dynamique d'une goutte sous écoulement extensionnel axisymétrique avec $\dot{\gamma} > 0$ (trait plein) et $\dot{\gamma} < 0$ (trait pointillé), $Ca = 0.1$ et $Bq_s = Bq_d$ . <b>(a)</b> $D_{T,\infty}$ <b>(b)</b> $\tau_{sat}$ . . . . .	89
3.21	Dynamique d'une goutte sous écoulement extensionnel axisymétrique avec $\dot{\gamma} > 0$ (trait plein) et $\dot{\gamma} < 0$ (trait pointillé), $Ca = 0.1$ et $Bq_d = 0$ . <b>(a)</b> $D_{T,\infty}$ <b>(b)</b> $\tau_{sat}$ . . . . .	89
3.22	Lignes d'écoulement dans le cas axisymétrique. Les couleurs indiquent l'intensité de la vitesse. . . . .	90
3.23	Lignes d'écoulement dans le cas d'un écoulement plan : la forme des boucles de recirculation est plus complexe du fait de la présence de points hyperboliques le long de chacun des axes. Sur la partie gauche de la figure, sont représentées les lignes de courant dans le plan $z = 0$ , sur la partie droite, une des huit boucles de recirculation est représentée. . . . .	91
3.24	Evolution de la vitesse maximale tangente sur l'interface stationnaire en fonction de la viscosité de surface. Différentes situations (plan, axi, $Bq_s$ dominant, $Bq_d$ dominant, $Bq_s \sim Bq_d$ ) sont représentés. Dans tous les cas, on observe une décroissance en $1/Bq_x$ . . . . .	92
3.25	Évolution du paramètre de Taylor en fonction du temps adimensionné $\dot{\gamma}t$ . Lorsqu'un état stationnaire est atteint, on trace également l'asymptote en traits pointillés. On remarque que le temps nécessaire à atteindre l'état stationnaire augmente lorsqu'on se rapproche du capillaire critique. La simulation stable la plus proche du seuil ( $Ca = 0.12$ ) a été poursuivie jusqu'à $\dot{\gamma}t = 60$ et l'asymptote est déterminée à partir de ce temps de simulation. . . . .	93
3.26	Evolution du <b>(a)</b> paramètre de Taylor $D_{t,\infty}$ et <b>(b)</b> temps caractéristique de déformation $\tau_{sat}$ pour $Bq_s = 10$ , $\chi$ et $Ca$ variables. . . . .	94

3.27	Diagramme de stabilité pour une goutte dans un écoulement hyperbolique plan : les points verts correspondent aux simulations stables, les croix rouges aux situations instables. La ligne est un guide visuel pour délimiter la zone de transition. . . . .	94
3.28	Évolution du capillaire critique en fonction de $Bq_x$ ( $= Bq_s, Bq_d, Bq$ ). Les données numériques sont représentées par des symboles reliés. L'évolution théorique donnée en inversant la relation théorique de Flummerfelt est représentée avec des traits pleins : elle capture qualitativement l'effet des viscosités interfaciales, mais surestime le capillaire critique. . . . .	96
3.29	Relaxation d'une goutte initialement étirée : l'écoulement externe est nul, et la goutte relaxe par la tension superficielle. On présente ici une coupe de la forme qui est axisymétrique autour de l'axe correspondant à la direction de l'écoulement. Le temps est adimensionné par le temps capillaire $t_\gamma = \frac{\gamma R_0}{\eta}$ . <b>A gauche</b> , une goutte sans surfactants et sans contraste de viscosité $\lambda = \eta_i/\eta_e$ : un pincement aux extrémités se développe et conduirait à la rupture de la goutte. <b>A droite</b> , une goutte avec viscosité surfacique de cisaillement : la goutte relaxe jusqu'à la forme sphérique. . . . .	98
3.30	Forme à $t = 50$ pour une goutte "propre" avec un contraste de viscosité égal à 1. Le code couleur représente l'intensité de la vitesse. Sur la partie droite, on a tracé les vitesses sur la coupe du profil. On remarque que le champs de vitesse tend à amplifier le pincement : la goutte est instable. . . . .	99
4.1	<b>A gauche</b> : Forme prolate, minimum global de l'énergie de flexion pour $v = 0.95$ . <b>A droite</b> : Forme oblate, minimum global de l'énergie de flexion pour $v = 0.59$ . . . . .	103
4.2	Évolution de la longueur des axes principaux de l'ellipsoïde d'inertie équivalent à la vésicule. <b>A gauche</b> : $v = 0.6$ . <b>A droite</b> : $v = 0.635$ . Les lignes continues correspondent à $L_1$ , les lignes discontinues à $L_2$ et les lignes pointillées à $L_3$ . . . . .	104
4.3	<b>Droite</b> : Évolution du paramètre de forme en fonction du temps adimensionné, pour différents nombres capillaires et un dégonflement de $v = 0.635$ . <b>Gauche</b> : Évolution du paramètre de forme (normalisé par sa valeur maximum) en fonction du nombre capillaire normalisé par le nombre capillaire critique, pour différents volumes réduits. Tous les points s'alignent sur deux branches de solution, l'une prolate ( $\beta/\beta_{max} \approx 1$ ) et l'autre oblate ( $\beta/\beta_{max} < 0$ ). . . . .	105

4.4	Transition de forme oblate vers prolata provoquée par les contraintes hydrodynamiques ( $v = 0.635, Ca = 2$ ). Instantanés dans le plan $z - y$ (en haut), dans le plan $x - z$ (au centre) et dans le plan $x - y$ (en bas) pour différents temps adimensionnés (de gauche à droite $\dot{\gamma}t = 0; 1; 2; 4; 6; 8; 12;$ ).	105
4.5	Évolution du temps de transition en fonction du nombre capillaire pour différents volumes réduits. Les symboles correspondent aux points simulés, les lignes continues correspondent au fit numérique par $1/\sqrt{Ca - Ca_c} + t_\infty$ .	107
4.6	Exemple de diagramme d'énergie en fonction d'une variable d'état $x$ avec bifurcation, évoluant avec un paramètre de contrôle donné. Chaque ligne correspond à une valeur du paramètre de contrôle.	108
4.7	Evolution du temps de transition en fonction du volume réduit, pour un nombre capillaire de $Ca = 0.5$ . Les points correspondent aux points de simulation, et la courbe à un fit par $t_{tr} = \frac{1}{(v - \nu_c)^\alpha}$ , avec les coefficients (déterminés par la régression) : $\nu_c \approx 0.635, \alpha \approx 0.500$ .	109
4.8	Nombre capillaire critique séparant la région bistable de la région prolata en fonction du volume réduit. Les symboles représentent un extrait des simulations menées dans le régime à faible nombre capillaire. La ligne continue avec symboles représente les données pour une vésicule libérée à proximité d'une paroi à une hauteur $h/R_0 = 1.1$ , tandis que la ligne pointillée représente les données pour une vésicule dans un écoulement cisailé simple.	111
4.9	Profil de pression verticale dans le film de lubrification. Figure issue de [CM99].	115
4.10	Valeur de $\lambda$ en fonction de la définition du point le plus bas du maillage.	118
4.11	<b>Gauche</b> : Comparaison de la vitesse de décollement pour $v = 0.95$ et $Ca = 8$ avec les résultats présentés dans [ZSS11]. "Naturel" correspond à une vésicule libre de s'éloigner de la paroi, "quasi-statique" correspond à une vésicule bloquée à une distance fixe de la paroi et ayant atteint un état stationnaire. <b>Droite</b> : Schéma du système considéré, une vésicule ellipsoïdale placée dans un écoulement cisailé en proche paroi.	119
4.12	Dynamique de décollement d'une vésicule biconcave ( $v = 0.635; Ca = 0.375$ ) : instantanés dans le plan $z - y$ (en haut), dans le plan $x - z$ (au centre) et dans le plan $x - y$ (en bas), pour différents temps adimensionnés (de gauche à droite $\dot{\gamma}t = 0; 2; 5; 10$ ).	120
4.13	<b>Gauche</b> : Angle d'inclinaison de la vésicule dans le plan de cisaillement. <b>Droite</b> : Valeur du stresslet $S_{22}$ pour $v = 0.635$ , différents nombres capillaires et familles de forme de départ.	121

4.14	<b>Gauche</b> : Dynamique de migration d'une vésicule de volume réduit $v = 0.635$ en fonction de la forme initiale (oblate - lignes pointillées, prolate - lignes continuées) et du nombre capillaire. <b>Droite</b> : Vitesse de décollement adimensionnée en fonction de la hauteur du centroïde adimensionnée, pour une vésicule de dégonflement $v = 0.635$ avec une forme initiale oblate. Le nombre capillaire critique pour ce volume réduit est $\approx 0.52$ . . . . .	122
4.15	Projection de la vésicule dans le plan de la paroi pour différentes valeurs de $Ca$ . . . . .	122
4.16	Forme asymétrique d'une vésicule prolate ( $Ca = 10$ ). Instantanés dans le plan $x - z$ (en haut) et dans le plan $x - y$ (en bas), correspondant aux hauteurs adimensionnées $\frac{h}{R_0} = 1.6; 2.3; 3.5; 5$ . . . . .	123
4.17	Forme perlée transitoire due à la présence de la paroi, obtenue pour une vésicule dégonflée sans contraste de viscosité ( $\lambda = 1$ ) sous écoulement cisailé de forte intensité ( $Ca = 50$ ). . . . .	124
5.1	Ellipsoïde rigide plongé dans un écoulement cisailé. Le repère $(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z})$ correspond au repère cartésien fixe par rapport à l'écoulement. Le repère $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$ correspond au repère cartésien lié au centre de l'ellipsoïde et orienté selon les trois axes principaux de celui-ci. . . . .	128
5.2	Contraste de viscosité de transition entre les dynamiques de <i>tank-treading</i> ("stationary") et de <i>tumbling</i> ("flipping"). En abscisses, le ratio $r_3$ ; en ordonnées, le contraste de viscosité $\lambda$ . $s_0 = (6\pi^{1/2}V)^{2/3}S^{-1}$ est une mesure de la sphéricité de l'ellipsoïde, avec $S$ et $V$ respectivement la surface de l'ellipsoïde et le volume englobé dans celle-ci. Les symboles représentent les observations expérimentales de (Besins et Mohandas 1975)(croix et carrés) et de (Morris et Williams 1979)(ronds). . . . .	133
5.3	Système étudié : un polymersome plongé dans un écoulement cisailé de direction $\mathbf{x}$ et d'intensité $\dot{\gamma}$ . Les grandeurs $L_1, L_2$ et $L_3$ correspondent aux demi-axes de l'ellipsoïde équivalent d'inertie, et $\theta$ est défini comme l'angle formé par le demi-axe de longueur $L_1$ avec la direction de l'écoulement. . . . .	134
5.4	$Bq_s = 3, v = 0.85$ et $Ca = 5$ - Mouvement de <i>tank-treading</i> . <b>A gauche</b> : évolution temporelle de l'angle d'inclinaison et de la déformation de la membrane. <b>A droite</b> : portrait de phase. . . . .	135
5.5	<b>En haut</b> : Angle d'inclinaison d'un polymersome sous écoulement cisailé, $Ca = 0.92$ et comparaison avec les résultats de [NG04]. <b>En bas</b> : Angle d'inclinaison d'une vésicule sous écoulement cisailé, $Ca = 10$ , aucune viscosité membranaire et aucun contraste de viscosité. Les résultats de simulation sont comparés aux données issues de [ZSS11] et [YB12]. . . . .	136

5.6	<b>Bq<sub>s</sub> = 3.5</b> , $v = 0.85$ et $Ca = 5$ - Oscillation amortie vers un mouvement de <i>tank-treading</i> avec un angle final négatif. . . . .	137
5.7	Formes durant une période de <i>trembling</i> induit par la viscosité interfaciale de cisaillement observée pour $Bq_s = 4$ et pour $t = 0$ jusqu'à $t = 15$ (gauche vers la droite). <b>Haut</b> : vue orthogonale au plan de l'écoulement. <b>Milieu</b> : Vue de dessus. <b>Bas</b> : vue par devant.	138
5.8	$Bq_s = 4.0$ (haut) et $Bq_s = 5.67$ (bas), $v = 0.85$ et $Ca = 5$ : Oscillation permanente d'un polymersome appelée dynamique de <i>trembling</i> ou <i>vascillating-breathing</i> par analogie avec le cas de vésicules à contraste de viscosité. . . . .	139
5.9	<b>Bq<sub>s</sub> = 6.0</b> , $v = 0.85$ et $Ca = 5$ - Rotation permanente d'un polymersome autour de l'axe de vorticit�e appelée dynamique de tumbling par analogie avec le cas de v�esicules � fort contraste de viscosit�e. . .	140
5.10	Formes durant une p�eriod�e de <i>tumbling</i> induit par la viscosit�e interfaciale de cisaillement pour $Bq_s = 6.0$ et de $t = 0$ � $t = 14$ (gauche vers la droite). <b>Haut</b> : vue orthogonale au plan de l'�coulement. <b>Milieu</b> : Vue de dessus. <b>Bas</b> : vue par devant. . . . .	140
5.11	Diagramme de phase des dynamiques de forme d'un polymersome de d�egonflement $v = 0.85$ dans un �coulement de cisaillement simple.	141
5.12	Diagramme de phase des dynamiques de forme d'un polymersome de d�egonflement $v = 0.95$ dans un �coulement de cisaillement simple.	142
5.13	�volution de la d�eformation $D_T$ et de l'orientation $\theta$ d'un polymersome oblate de d�egonflement $v = 0.6$ dans un cisaillement simple : $Ca = 0.5$ . . . . .	143
5.14	�volution de la d�eformation $D$ et de l'orientation $\theta$ d'un polymersome oblate de d�egonflement $v = 0.6$ dans un cisaillement simple : $Ca = 1$ .	144
5.15	Comparaison entre les comportements � $Ca = 0.5$ et $Ca = 1$ en fonction de la viscosit�e de cisaillement. . . . .	144
5.16	Diagramme d'un polymersome oblate de volume r�eduit $v = 0.6$ dans un �coulement de cisaillement simple pour $Bq_s \leq 6$ . Quatre dynamiques sont observ�es : i) le polymersome reste oblate et effectue un mouvement de tank-treading sans relaxation oscillante. ii) le m�eme comportement mais avec une relaxation oscillante. iii) Le polymersome oblate transite en prolate et effectue un mouvement de tank-treading (triangle). iv) le polymersome transite en prolate et effectue un mouvement de trembling-VB (diamant). . . . .	145
5.17	Mode Trembling-VB : oscillation de l'inclinaison et portrait de phase $(D, \theta)$ dans le cas $v = 0.6$ , $Ca = 5$ et $Bq_s = 2$ . Il a la m�eme forme pour l'ensemble des points du diagramme pr�ec�edent de $Ca = 3$ � $Ca = 50$ . . . . .	146
5.18	Dynamique de <i>S-tumbling</i> observ�ee par [FM12] pour une v�esicule de d�egonflement $v = 0.60$ plong�ee dans un �coulement cisail�e, $Ca = 10$ et $\lambda = 12$ . . . . .	147

# Liste des tableaux

1.1	Propriétés membranaires d'une vésicule, d'un polymersome et d'un globule rouge. . . . .	41
3.1	Comparaison de l'évolution en fonction de $Bq$ du temps de saturation et de relaxation pour trois nombres capillaires différents . . . . .	85

# Introduction

Le domaine de la microfluidique connaît un essor grandissant depuis les dernières décennies [Whi06 ; SQ05]. D'une part, un ensemble de problématiques appliquées et fondamentales parfois transdisciplinaires ont émergées comme le rôle des interfaces (nature physico-chimique, rugosité...) sur les conditions aux limites d'un écoulement, la migration de macromolécules telles que l'ADN dans des canaux de faible dimension devant le rayon de giration, la rhéologie de fluides biologiques tel que le sang, les suspensions de nageurs... avec des applications en médecine, pharmacologie, cosmétique, bâtiment, chimie analytique ou encore agroalimentaire. D'autre part, l'ensemble de ces études n'auraient pu être réalisées sans le développement de la technologie microfluidique mettant à la disposition des chercheurs des méthodes de conception et de fabrication à des échelles micrométriques (et en deçà) avec des outils toujours plus précis et moins onéreux et des matériaux plus divers. Il est aujourd'hui possible de réaliser des expériences contrôlées en microfluidique sans pour autant disposer de salle blanche, une gageure à la fin des années 1990. Souvent, la production de gouttelettes plus ou moins complexes suivant la nature de leurs interfaces ou des fluides mis en jeu est une première étape. Ainsi, dans le domaine de l'encapsulation au sens large, le but est d'internaliser une molécule active au sein d'une gouttelette pour la transporter efficacement, la protéger et la délivrer dans un domaine d'intérêt. Dans le domaine de la pharmacopée, il existe deux types de capsules : soit elles sont pleines (micelles, gels par exemple), soit elles possèdent une membrane fine devant la taille de la gouttelette. Notre étude porte sur divers objets entrant dans cette dernière catégorie. On retrouve par exemple dans nos aliments des capsules composées de chitosan (biopolymère dérivé de la chitine) pour encapsuler les enzymes très prisées des industries agro-alimentaires [Mad+06 ; Gun+11 ; Xie+17]. Un autre type d'application en microfluidique se retrouve dans le concept de "lab-on-a-chip", qui utilise la miniaturisation et l'automatisation de nombreux procédés d'analyse biologiques et médicaux, pour proposer des "minis laboratoires" (par exemple d'analyses sanguines) sur la taille d'une puce ou d'une carte de crédit [She+05].

La plupart des systèmes qu'on retrouve en microfluidique sont associés au domaine de la matière molle. Ces systèmes ont, d'un point de vue mécanique, la caractéristique de se déformer si de faibles sollicitations sont exercées. Un exemple patent concerne les globules rouges que l'on peut voir scintiller au microscope, ce qui correspond à des fluctuations de forme induites par l'agitation thermique

avec des énergies mises en jeu de l'ordre de quelques dizaines de  $k_B T$  [BL75]. La membrane des cellules biologiques est constituée d'une bicouche lipidique dans laquelle sont insérées des protéines membranaires. Il est possible de fabriquer en routine des objets appelés vésicules seulement limités par une bicouche de phospholipides auto-organisés [Sei97]. Quand les vésicules sont dégonflées comme un ballon de football, elles sont tout aussi déformables que les globules rouges mentionnés plus haut. La membrane est à la fois fluide tout en résistant à la flexion, des propriétés particulièrement remarquables au point de vue fondamental. Les propriétés de cette membrane peuvent être modifiées par l'ajout de composés particuliers qui la fonctionnalisent. Les phospholipides peuvent aussi être remplacés par des copolymères qui s'auto-organisent de la même manière [DA06; Dim+02]. On parle alors de polymersomes. La membrane peut aussi être constituée de polymères ou protéines réticulées ou en interaction électrostatique conférant des propriétés viscoélastiques : la membrane est ici un solide, on réserve le terme de capsules à ce type d'objets en physique et mécanique [Poz03; Bar16; De +14; Lou+15]. Pour finir, il reste à évoquer la goutte. Pour stabiliser les émulsions, il est nécessaire que des surfactants s'adsorbent à l'interface. L'ensemble de ces particules déformables sont caractérisées par leur rhéologie interfaciale qui dépend de la nature de la membrane.

Ces systèmes évoluent généralement dans un écoulement externe qui les véhiculent et sollicitent mécaniquement leur interface. Leur stabilité dépend donc des propriétés du fluide environnant, de l'écoulement imposé mais également des propriétés intrinsèques de l'interface entre le fluide interne et externe [VBM13]. Dans cette optique, les travaux présentés dans ce manuscrit se concentrent sur la dynamique d'une goutte, d'une vésicule et d'un polymersome plongés dans un écoulement rampant, typique de la microfluidique. Ces études ont été réalisées à l'aide d'un code de calcul numérique qui modélise les différentes contributions des systèmes considérés à la dynamique de l'interface [BLJ17].

La première partie de ce manuscrit détaillera les différents systèmes étudiés au cours des travaux réalisés. Nous rappelons les propriétés des écoulements à faible nombre de Reynolds. Ensuite, nous présentons les objets qui seront abordés dans la suite du manuscrit et en particulier, la nature des forces interfaciales.

Dans la deuxième partie, nous précisons les méthodes numériques qui permettent l'étude de ces objets sous écoulement externe. Nous y présentons la décomposition spatiale de l'interface en éléments courbes ainsi que les modèles utilisés pour traduire les différentes contributions à la dynamique interfaciale des gouttes, des vésicules et des polymersomes. Les stratégies de résolution numérique développées dans le cas d'une interface visqueuse sont ensuite détaillées.

La troisième partie du manuscrit est dédiée à l'étude de la dynamique d'une goutte dont l'interface présente un comportement visqueux et plongée dans un

écoulement extensionnel. Nous analysons les phénomènes transitoires qui apparaissent en fonction des contraintes hydrodynamiques, de la tension de surface et des viscosités surfaciques. A la lumière de ces résultats, nous caractérisons l'influence forte des viscosités de cisaillement et de dilatation sur la dynamique interfaciale. La forme stationnaire de la goutte immergée dépend également de ces paramètres : nous détaillons ses caractéristiques et les conditions de son existence en fonction des viscosités interfaciales.

Dans la quatrième partie, nous présentons les résultats d'une étude numérique réalisée sur une vésicule plongée dans un écoulement cisailé. Lorsque cette vésicule est fortement dégonflée, il apparaît deux familles de forme d'équilibre thermodynamique stables qui co-existent en l'absence de sollicitations extérieures. Nous étudions comment les contraintes hydrodynamiques affectent ces deux familles de forme, et montrons que l'une des branches de solution est détruite par l'écoulement à partir d'une intensité d'écoulement critique. Nous caractérisons la nature de la bifurcation conduisant à la destruction de cette branche de solution. Nous étudions ensuite l'influence de la proximité d'une paroi solide sur la dynamique de la vésicule, situation dans laquelle il est connu que la vésicule migre (se déplace perpendiculairement aux lignes d'écoulement de l'écoulement non perturbé) pour s'éloigner de la paroi. Nous étudions comment cette dynamique dépend de la forme initiale de la vésicule.

Enfin, la cinquième partie est consacrée à la dynamique de polymersomes sous écoulement. Les polymersomes possèdent des propriétés mécaniques similaires à celles des vésicules, mais leur membrane peut être considérée comme un fluide incompressible visqueux sur une surface courbe. Nous retrouvons des dynamiques similaires à celles d'une vésicule qui dépendent de la viscosité surfacique de cisaillement de la membrane. Le dégonflement du polymersome participant à l'apparition de ces comportements, nous présentons un diagramme de phase pour un polymersome faiblement dégonflé par rapport à la sphère puis pour un polymersome fortement dégonflé en fonction du nombre capillaire et de la viscosité de cisaillement. Ce dernier est à rapprocher de la dynamique observée pour un globule rouge, qui présente une forme d'équilibre similaire et des propriétés membranaires comparables.

# 1 Définition des systèmes étudiés

## 1.1 Objets déformables dans un écoulement de Stokes

### 1.1.1 Fluides complexes et matière molle

Parmi les différents états de la matière, l'état fluide est caractérisé par une mobilité plus ou moins grande de ses composants élémentaires. Cette mobilité s'exprime à travers la déformation du milieu considéré sous l'effet de sollicitations diverses : gradient de pression, dilatation due à la température, réaction chimique, etc. Des lois de comportement sont définies pour étudier les relations parfois complexes qui existent entre les contraintes appliquées sur un milieu et sa déformation. On peut citer comme exemple le cas des fluides newtoniens, pour lesquels déformations et contraintes sont liées par la viscosité du fluide qui ne dépend que de la température, de la pression et de la composition chimique dans des conditions données. Dans ce cas, le comportement mécanique du milieu dépend uniquement des contraintes de cisaillement qui lui sont appliquées et de ses propriétés macroscopiques.

Cependant, un certain nombre de fluides ne correspondent pas à cette définition. Ce sont des fluides dits non-newtoniens, pour lesquels la viscosité peut varier au cours du temps (thixotropie) ou en fonction des contraintes appliquées (rhéo-épaississant, rhéo-fluidifiant). A titre d'exemple, un liquide comme le sang peut présenter une variation de sa viscosité macroscopique mesurée en capillaire. Ce cas particulier illustre la notion de fluide complexe : les propriétés mécaniques du milieu dépendent non seulement des grandeurs macroscopiques, mais également de sa composition et ses propriétés à plus petite échelle. Ainsi, [FL31] démontrent que lorsque l'écoulement sanguin passe dans des capillaires de diamètre supérieur à  $7 \mu\text{m}$ , la viscosité effective du sang augmente avec le diamètre jusqu'à une saturation à cause de la répartition des globules rouges et du plasma dans le liquide. Lorsque la taille caractéristique du capillaire est inférieure à  $7 \mu\text{m}$ , la viscosité du fluide augmente fortement avec la diminution du diamètre, les globules rouges formant un train dans le canal. [PNG92] mettent en lumière la relation qui existe entre la viscosité apparente de l'écoulement sanguin et la dissipation d'énergie entre les globules rouges, liée elle aussi au diamètre du capillaire.

On comprend donc bien l'intérêt d'étudier non seulement les caractéristiques des fluides complexes, mais également des éléments qui les composent. Dans l'exemple précédent, les observations réalisées confortent cette approche multi-échelles (figure 1.1). Dans le cas des suspensions en général, on peut ainsi étudier le comportement individuel de gouttes ou de particules déformables, puis les propriétés d'un ensemble macroscopique de ces constituants.

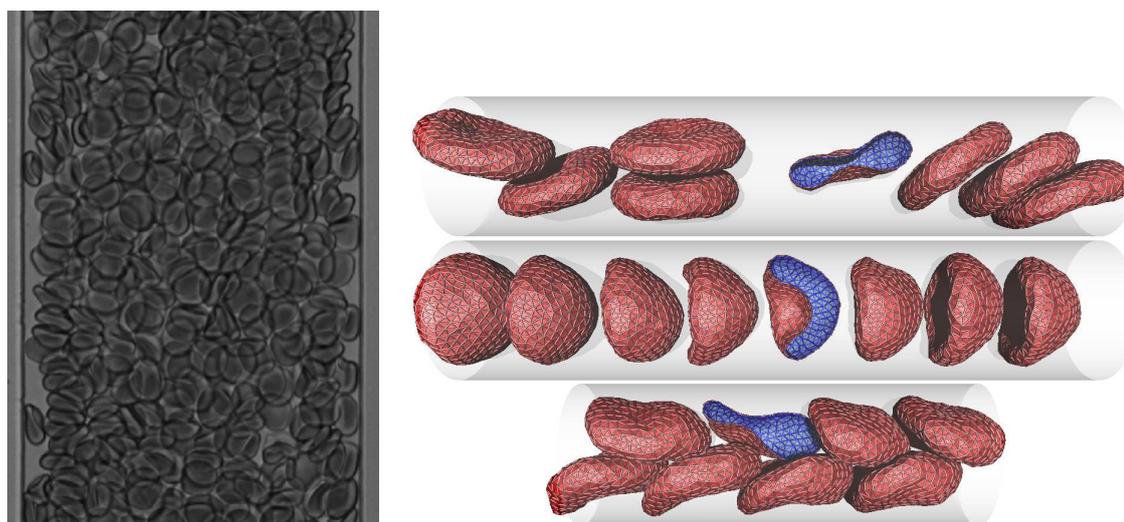


FIGURE 1.1 – Différentes approches d'un écoulement sanguin. **A gauche** : Écoulement sanguin dans un canal microfluidique de diamètre  $70 \mu\text{m}$  [Bur+12]. **A droite** : Suspension de globules rouges sous forme de disque (en haut), de parachute (au centre) ou de pantoufle (en bas) dans un écoulement de Poiseuille avec un diamètre de canal de  $9.6 \mu\text{m}$  [FNG14].

Lorsque ces objets possèdent une grande déformabilité, c'est à dire lorsque de faibles sollicitations extérieures impliquent de grandes déformations, on parle alors de matière molle (De Gennes, discours lors de la remise du prix Nobel de physique en 1991), terme introduit par Madeleine Veyssié au début des années 1970. Cette caractéristique est principalement induite par l'intensité des interactions entre les composants élémentaires des systèmes étudiés, proche de celle de l'agitation moléculaire. Par exemple, l'interaction entre particules colloïdales est régie par les forces électrostatiques, de Van der Waals ou encore entropiques [Rus+91]. De même, les flagelles de bactéries, comme tout autre système de dimension comparable et présentant une ou deux dimensions principales, sont sensibles aux sollicitations extérieures et réagissent par de grandes déformations à celles-ci [Hig79].

L'érythrocyte, ou globule rouge, est un parfait exemple d'objet issu du domaine de la matière molle. La membrane d'un globule rouge est composée d'une structure faite de lipides organisés en bi-couche, d'un cytosquelette, de protéines et

d'autres composants (figure 1.2) qui interviennent dans les propriétés physico-chimiques et mécaniques de la particule. Cette structure réagit aux sollicitations hydrodynamiques typiques de la micro-fluidique et adopte différentes formes en fonction des propriétés de la membrane et de son environnement, comme illustré figure 1.1. La richesse de la dynamique de ce type d'objets en fait donc un sujet de nombreuses publications et recherches (quelques exemples parmi d'autres : [KBM09 ; Bru+14 ; Fed+11 ; FFG12 ; QS17]), de même que le comportement de polymères, de gels, de cristaux liquides ou encore de suspensions colloïdales.

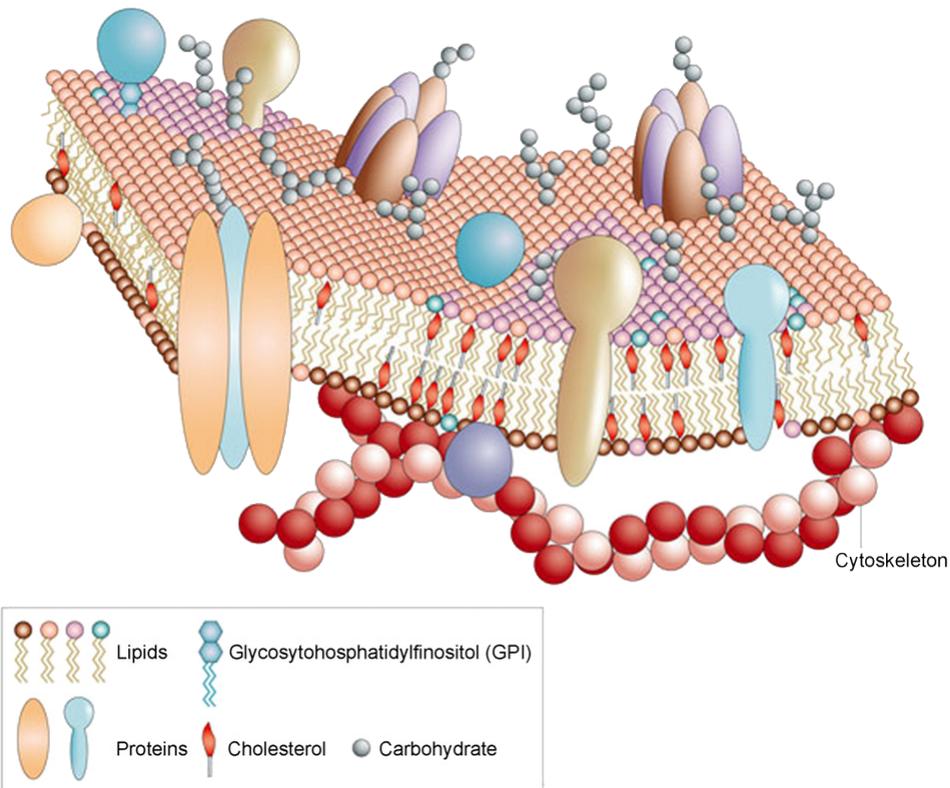


FIGURE 1.2 – Composition de la membrane d'un globule rouge [VPM09].

Ce manuscrit est principalement centré sur l'étude de la dynamique d'une goutte, d'une vésicule et d'un polymersome dans un écoulement. La goutte est l'un des objets les plus étudiés dans le domaine de la matière molle et mécanique. Elle est constituée d'une phase fluide de densité  $\rho$  et de viscosité  $\eta$  en suspension dans un autre fluide de densité  $\rho' \neq \rho$  et de viscosité  $\eta'$ . L'interface ainsi formée est caractérisée par une tension de surface  $\gamma$  qui correspond à l'énergie nécessaire pour augmenter la surface d'une unité d'aire, c'est à dire pour amener des molécules depuis le volume fluide vers l'interface. De dimension variable, on peut retrouver des gouttes de moins de  $1\mu\text{m}$  de diamètre, dans le cas des émulsions par exemple, comme des gouttes de pluie de l'ordre du millimètre [Mcf10]. En microfluidique, les gouttes sont généralement de diamètre

inférieur à  $500\mu\text{m}$ , taille typique des canaux utilisés dans les expérimentations. Les études dédiées à la dynamique des gouttes, individuelles ou en suspension, sont nombreuses et seront détaillées dans la partie 3.7. Un certain nombre de procédés industriels et médicaux en utilisent les propriétés : on retrouve ainsi le concept de gouttes dans les imprimantes à jet d'encre [Dör82] ou encore dans l'industrie agro-alimentaire [Bru89].

Lorsque la goutte est enrobée d'une bi-couche de phospholipides amphiphiles, fabrication par électroformation dans une solution aqueuse par exemple [Ang+92], on parle alors de vésicule. Les phospholipides s'auto-organisent de manière à protéger leurs parties hydrophobes, formant ainsi une surface fermée. Les molécules étant libres de se déplacer sur cette surface et en l'absence de structure de référence, la membrane ainsi créée est considérée comme un fluide bi-dimensionnel. Cette membrane, épaisse de 5 nm environ, présente également les propriétés mécaniques d'un milieu solide (résistance à la flexion et à l'extension-contraction) dues à sa composition (figure 1.3). Ces propriétés seront détaillées dans la partie 1.3.1.

Les vésicules étudiées généralement dans le cadre de la micro-fluidique sont de 10 à  $100\mu\text{m}$  de taille caractéristique. De par la structure de leur membrane, proche de celle d'un globule rouge, elles permettent de modéliser la dynamique d'un globule rouge sous écoulement si la vésicule est suffisamment dégonflée. On remarque par exemple que deux objets adoptent une forme d'équilibre biconcave analogue dans certaines conditions [SBL91]. Les vésicules sont également utilisées dans l'industrie pharmaceutique pour répondre à un besoin d'encapsuler, de véhiculer et de protéger des principes actifs dans des milieux organiques. Enfin, le développement de lab-on-a-chip [Yag+06] suscite un intérêt accru pour ces objets qui peuvent servir de micro-réacteurs [NL04] pour diverses applications biologiques et médicales.

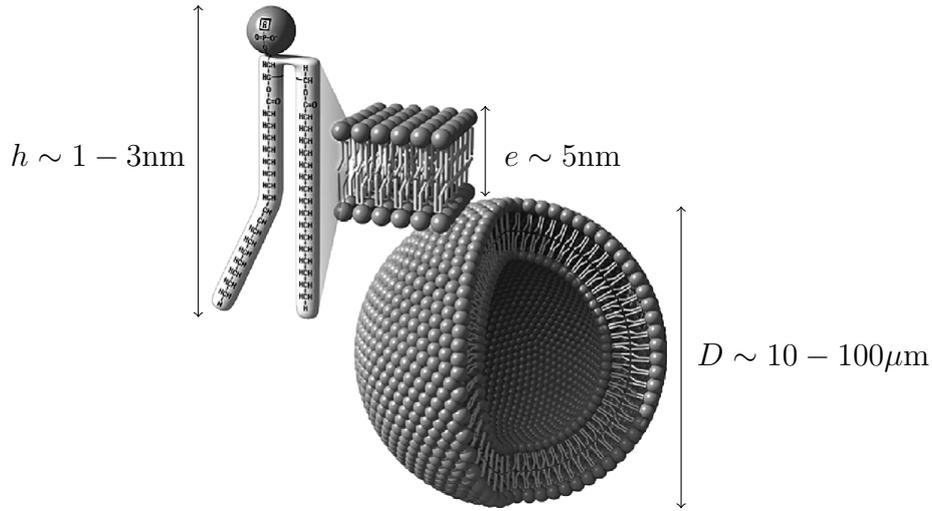


FIGURE 1.3 – Représentation schématique de la composition d'une vésicule. De gauche à droite : une molécule phospholipidique, composée d'une tête hydrophile et de deux queues hydrophobes ; un élément de membrane composé de deux couches de phospholipides ; une vésicule sphérique. (Site de l'Institut d'Astrobiologie de la NASA)

### 1.1.2 Écoulements de Stokes

Nous étudierons l'évolution des objets décrits ci-dessus dans un écoulement de fluide dit newtonien. Ces fluides ont la propriété suivante : le tenseur des contraintes de viscosité  $\sigma'_{ij}$  dépend linéairement des valeurs de taux de déformations à un instant donné. En particulier, si l'on suppose que le milieu considéré est isotrope, on peut écrire la relation suivante :

$$\sigma_{ij} = 2\alpha e_{ij} + \beta \delta_{ij} e_{kk} \quad (1.1)$$

avec  $e_{ij}$  le tenseur des taux de déformations,  $\delta_{ij}$  le symbole de Kronecker,  $\alpha$  et  $\beta$  des constantes réelles propriétés du milieu considéré. Cette relation, en décomposant  $e_{ij}$  en une partie diagonale et une partie de trace nulle, se reformule comme

$$\sigma_{ij} = \eta \left( 2e_{ij} - \frac{2}{3} \delta_{ij} e_{kk} \right) + \xi (\delta_{ij} e_{kk}) \quad (1.2)$$

$\eta$  est le coefficient de viscosité de cisaillement, tandis que  $\xi$  est le coefficient de viscosité de dilatation. La première partie du membre de droite est lié à une déformation sans changement de volume, la seconde partie à une dilatation isotrope. Il est à noter que la dernière partie est nulle pour un fluide incompressible ce qui est notre cas. Il en résulte aussi la condition d'incompressibilité en consi-

dérant la conservation de la masse :  $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$ . Ainsi, on retrouver l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v} = \rho \mathbf{f} - \nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} \quad (1.3)$$

La forme adimensionnée de l'équation 1.1.2 s'établit en considérant l'échelle de taille caractéristique  $L$  et l'échelle de vitesse de l'écoulement caractéristique  $U$ . Les variables sans dimension s'écrivent alors

$$\mathbf{r}' = \frac{\mathbf{r}}{L} \quad \mathbf{v}' = \frac{\mathbf{v}}{U} \quad t' = \frac{t}{L/U} \quad p' = \frac{p}{\rho U^2} \quad (1.4)$$

En divisant la relation 1.1.2 par  $\rho U^2/L$ , on obtient alors l'équation de Navier-Stokes adimensionnée :

$$\frac{\partial \mathbf{v}'}{\partial t'} + (\mathbf{v}' \cdot \nabla')\mathbf{v}' = -\nabla' p' + \frac{\eta}{\rho U L} \Delta' \mathbf{v}' \quad (1.5)$$

On voit apparaître le nombre de Reynolds basé sur la longueur caractéristique  $L$ ,  $Re_L = \rho U L / \eta$  qui traduit le rapport entre les effets du terme non linéaire (ou inertiel) et le terme visqueux. Lorsque  $Re \ll 1$ , la contribution du terme d'inertie  $\rho(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v}$  dans l'équation 1.1.2 est négligeable devant les termes visqueux.

Lors de l'étude de la dynamique de gouttes ou de vésicules, on peut construire un nombre de Reynolds à partir de la taille caractéristique de ces objets  $R_0 \sim 10 \mu\text{m}$ . En considérant une solution aqueuse de viscosité  $\eta = 10^{-3} \text{ Pa.s}$  et de masse volumique  $\rho = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$  dans lequel est imposé un écoulement de vitesse caractéristique de l'ordre de  $10 \mu\text{m.s}^{-1}$ , on obtient une valeur  $Re_{R_0} \sim 10^{-4}$ . La dissipation visqueuse joue donc un rôle prépondérant dans le système étudié. De plus, on peut montrer que le terme  $\rho(\partial \mathbf{v} / \partial t)$  est négligeable devant le terme visqueux dans le domaine de fréquences étudiées.

En combinant ces hypothèses, l'équation 1.1.2 devient :

$$\nabla p - \rho \mathbf{f} = \eta \Delta \mathbf{v} \quad (1.6)$$

Si les forces externes dérivent d'un potentiel comme dans le cas d'une vésicule pesante par exemple ([BJL12]), on peut alors les inclure dans une pression re-normalisée et ainsi obtenir l'équation de Stokes :

$$\nabla p = \eta \Delta \mathbf{v} \quad (1.7)$$

à laquelle il faut associer la condition d'incompressibilité de l'écoulement, de même que pour l'équation de Navier-Stokes

$$\nabla \cdot (\mathbf{v}) = 0 \quad (1.8)$$

Les solutions de l'équation de Stokes possèdent plusieurs propriétés notables, qui seront détaillées dans la partie suivante.

### 1.1.3 Propriétés des écoulements de Stokes

#### 1.1.3.1 Unicité de la solution

Considérons un écoulement régi par l'équation de Stokes 1.7. On peut montrer que ces équations sont elliptiques, ce qui implique que la solution ne dépend que des conditions limites données aux bords du domaine fluide.

De plus, la linéarité de l'équation 1.7 assure l'unicité de cette solution.

L'enjeu dans le cadre de l'étude de la dynamique d'objets tels que les gouttes ou les vésicules est la définition de ces conditions limites à l'interface. A l'infini, la condition limite dépend de l'écoulement appliqué  $\mathbf{v}^\infty$  et s'écrit

$$\lim_{\mathbf{x} \rightarrow \infty} \mathbf{v} = \mathbf{v}^\infty \quad (1.9)$$

Les conditions limites à l'interface sont moins triviales. En effet, la position de celle-ci varie avec le temps; la frontière du domaine ainsi que les forces qui dépendent de la forme de l'interface varient, rendant le problème étudié non-linéaire. Il est donc nécessaire de développer des modèles mathématiques et numériques pour pallier à cette difficulté supplémentaire. Ceux-ci seront développés dans la partie 2.4.2.

#### 1.1.3.2 Additivité des solutions

Soit deux solutions de l'équation de Stokes  $\mathbf{v}_a(x, y, z, t)$  et  $\mathbf{v}_b(x, y, z, t)$  pour une géométrie de canal identique. Si on combine linéairement les conditions aux parois de ces deux solutions avec les coefficients  $\lambda_a$  et  $\lambda_b$ , l'équation 1.7 étant linéaire, l'écoulement qui en résulte  $\mathbf{v} = \lambda_a \mathbf{v}_a + \lambda_b \mathbf{v}_b$  est également une solution de l'équation de Stokes. Le gradient de pression associé à cet écoulement est défini par  $\nabla(p) = \lambda_a \nabla(p_a) + \lambda_b \nabla(p_b)$ .

Considérons maintenant deux écoulements tels que  $\mathbf{v}_a(x, y, z, t) = \mathbf{v}(x, y, z, t)$  et  $\lambda_b = 0$ . Ainsi, si on multiplie les conditions limites de l'écoulement par un coefficient  $\lambda_a$ , le module de la vitesse de l'écoulement est également multipliée par  $\lambda_a$  et le profil de vitesse reste identique en tout point tant que le nombre de Reynolds est suffisamment petit.

En particulier, pour  $\lambda_a = -1$ , le champ de vitesse change de sens dès lors que la vitesse aux parois et les gradients de pression changent de signe : c'est la propriété de réversibilité.

L'une des applications de la réversibilité des solutions de l'équation de Stokes

se manifeste lorsqu'on place un objet présentant un plan de symétrie dans l'écoulement. Supposons un objet immobile possédant un plan de symétrie défini par  $z = 0$  placé dans un écoulement de vitesse  $v^\infty$  loin de l'objet et orthogonal au plan de symétrie de celui-ci. Dans ce cas, les lignes de courant en amont du corps immergé sont symétriques de celles en aval.

Une autre conséquence de ce principe est illustré figure 1.4. En plaçant une sphère dure à proximité d'une paroi dans un écoulement cisailé qui obéit aux équations de Stokes, on observe que la sphère subit une rotation autour d'un axe orthogonal au plan de l'écoulement et une translation dans la direction principale de l'écoulement, mais aucune translation orthogonale à la paroi n'est observée.

Pour comprendre ce résultat peu intuitif, on peut décomposer l'écoulement cisailé en un écoulement uniforme et un écoulement cisailé centré sur la sphère, et étudier leurs effets respectifs sur la sphère. Prenons le cas d'un écoulement uniforme de vitesse  $U$  loin de la sphère. En chaque point  $(x, y, z)$  de l'écoulement dans un repère fixe donné, on observe la vitesse  $\mathbf{v}_0(x, y, z)$  comme illustré figure 1.4. Considérons que la vitesse perpendiculaire à la paroi dans le plan de l'écoulement  $\mathbf{v}_0(x, y, z) \cdot \mathbf{e}_y = V$ . Dans un premier temps, on inverse l'écoulement à l'infini, dont la vitesse devient alors  $-U$  : la vitesse de l'écoulement en  $(x, y, z)$  est également inversée par l'application de la réversibilité des solutions de l'équation de Stokes, et on définit  $\mathbf{v}_1(x, y, z) = -\mathbf{v}_0(x, y, z)$ . On obtient alors  $\mathbf{v}_1(x, y, z) \cdot \mathbf{e}_y = -V$ . Dans un second temps et en revenant à l'écoulement initial, on opère une symétrie par rapport au plan orthogonal au plan de l'écoulement : la sphère reste identique par symétrie, et l'écoulement à l'infini a une vitesse  $-U$ . La vitesse en chaque point devient alors  $\mathbf{v}_2(x, y, z) = \mathbf{v}_0(-x, y, z)$ , et la sphère a une vitesse de migration  $\mathbf{v}_1(x, y, z) \cdot \mathbf{e}_y = V$ . Or, les deux écoulements (1) et (2) possèdent les mêmes conditions limites : la vitesse résultante, solution des équations de Stokes, doit donc être identique par la propriété d'unicité. Pour cela, la vitesse de migration perpendiculaire à la paroi doit donc être nulle. De la même manière, on peut démontrer l'absence de portance provoquée par un écoulement cisailé sur une sphère immergée. Les deux écoulements simples n'impliquant pas de migration de la sphère perpendiculairement à la direction de l'écoulement, la somme de ces écoulements ne cause donc pas de portance.

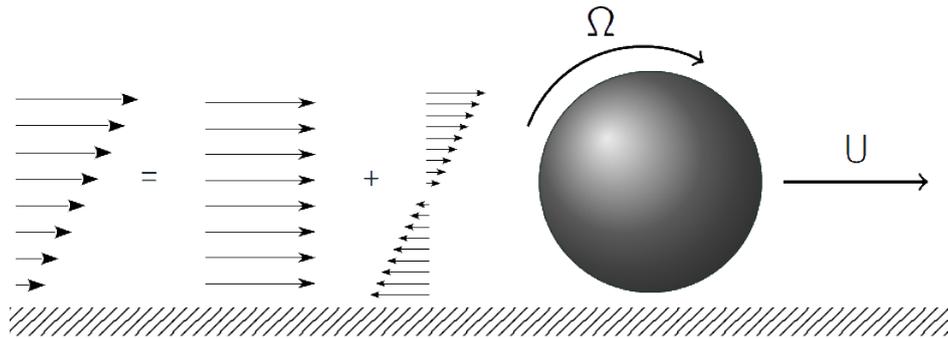


FIGURE 1.4 – Sphère immergée dans un écoulement uniforme de vitesse  $U$  à l’infini. **A gauche** : écoulement initial. **Au centre** : écoulement dont le sens des conditions limites a été inversé. **A droite** : écoulement symétrique par rapport au plan orthogonal au plan de l’écoulement.

## 1.2 La goutte : définition et dynamique

Les écoulements interne et externe à chaque objet sont décrits par les équations de Stokes qui possèdent des caractéristiques importantes pour la compréhension de la dynamique interfaciale. L’interface d’une goutte ou d’une vésicule possède également des propriétés mécaniques qui entrent en jeu dans leur comportement sous écoulement et qu’il convient donc d’explicitier.

### 1.2.1 Propriétés de l’interface

La principale caractéristique mécanique de l’interface d’une goutte est la tension de surface  $\gamma$ . Loin de l’interface, les molécules qui composent le fluide sont soumises aux interactions moléculaires provenant d’autres molécules voisines, de manière isotrope. Cependant, à l’interface, cette isotropie est brisée par le changement de phase : la résultante de ces interactions n’est pas nulle, et une résistance à l’expansion ou la rétraction de cette interface apparaît. La tension de surface est une mesure macroscopique de ces forces moléculaires proches de l’interface et qui dépendent des différentes phases présentes de chaque côté de l’interface.

La valeur de  $\gamma$  peut évoluer au cours du temps et selon sa position sur l’interface. Par exemple, un gradient de température ou de surfactants adsorbés peut affecter la distribution de tension de surface à l’interface, donnant lieu à des effets Marangoni [LK69].

Les études présentées dans ce manuscrit ignorent les cas de figure où de tels effets sont possibles. Dans notre cas, la tension de surface a une valeur constante  $\gamma$  dans le temps et le long de l’interface. La densité surfacique de forces prend

donc la forme suivante :

$$\mathbf{f}^{\text{int}}(\mathbf{x}) = \mathbf{f}^\gamma(\mathbf{x}) = 2\gamma H \mathbf{n} \quad (1.10)$$

avec  $H = (c_1 + c_2)/2$  la courbure moyenne au point  $\mathbf{x}$  (avec  $c_1$  et  $c_2$  les courbures principales de la surface) et  $\mathbf{n}$  la normale à l'interface pointée vers l'extérieur au point  $\mathbf{x}$ . Cette force dépend uniquement des caractéristiques géométriques de l'interface en l'absence de variation de la tension de surface le long de l'interface.

La présence de surfactants peut également induire de la dissipation interfaciale caractérisée par sa viscosité surfacique [Bou13]. Les contraintes visqueuses de ce fluide bi-dimensionnel peuvent être décomposées en plusieurs contributions, l'une due à une résistance au cisaillement et l'autre à la dilatation [Scr60] de la même façon que pour un fluide tri-dimensionnel. On définit donc le tenseur des contraintes visqueuses de Boussinesq-Scriven :

$$\sigma_{\text{visc}} = (\mu_d - \mu_s) \nabla_s \cdot (\mathbf{v}) \mathbf{P} + 2\mu_s \mathbf{e} \quad (1.11)$$

avec  $\mu_d$  la viscosité surfacique de dilatation,  $\mu_s$  la viscosité surfacique de cisaillement,  $\mathbf{e}$  le tenseur des taux de déformation surfaciques et  $\mathbf{P} = \mathbf{I} - \mathbf{nn}^T$  le tenseur de projection sur la surface de l'interface.

La densité surfacique de forces s'écrit alors :

$$\mathbf{f}^{\text{int}}(\mathbf{x}) = \mathbf{f}^\gamma + \mathbf{f}^{\text{visc}} \quad \mathbf{f}^{\text{visc}} = \nabla_s \cdot \sigma_{\text{visc}} \quad (1.12)$$

Par ailleurs, nous sommes ici dans le régime de Stokes ( $Re \ll 1$ ) : les sollicitations hydrodynamiques sont donc composées de contraintes en pression et de contraintes visqueuses dans chacun des volumes fluides considérés (équation 1.7).

C'est donc l'équilibre entre la tension de surface, les phénomènes de pression et les contraintes visqueuses qui régit la dynamique de l'interface de la goutte. Cet équilibre mécanique est traduit par l'équation suivante :

$$\bar{\sigma} \cdot \mathbf{n} + \mathbf{f}^{\text{int}} = \mathbf{0} \quad (1.13)$$

avec  $\bar{\sigma} \cdot \mathbf{n} = (\bar{\sigma}_e - \bar{\sigma}_i) \cdot \mathbf{n}$  le saut d'efforts fluides à l'interface et  $\mathbf{f}^{\text{int}}$  la densité de forces interfaciales.

De plus, on considère qu'aucun transfert de matière ne se fait entre la goutte et le fluide environnant. La vitesse est donc continue à l'interface ce qui s'exprime par la relation suivante :

$$\frac{D\mathbf{x}}{Dt} = \frac{\partial \mathbf{x}}{\partial t} = \mathbf{v}^m = \mathbf{v}^e = \mathbf{v}^i \quad (1.14)$$

avec  $v_\Gamma$  la vitesse de l'interface,  $i$  pour interne et  $e$  pour externe. Nous noterons que le volume interne est donc fixé.

Le système composé d'une goutte immergée dans un écoulement régi par les équations de Stokes est pleinement défini, ce qui permet une étude approfondie des différentes dynamiques comme décrit brièvement dans la partie suivante.

## 1.2.2 État de l'art

La forme sphérique de la goutte est une solution stationnaire des équations de Stokes, quelle que soit la tension interfaciale. Cependant, les conditions d'équilibre de cette solution varient selon les sollicitations extérieures ou inhérentes à l'interface. La déformation d'une goutte sous écoulement a été étudiée par G.I. Taylor dès 1932 [Tay32 ; Tay34]. L'auteur définit le paramètre  $D_T$  tel que

$$D_T = \frac{L - l}{L + l} \quad (1.15)$$

avec  $L$  et  $l$  les longueurs des axes de l'ellipse résultant de la coupe de la goutte dans le plan de l'écoulement et  $L > l$  pour caractériser la déformation d'une goutte. En particulier,  $D_T = 0$  lorsque la goutte est sphérique. Le nombre capillaire  $Ca_\gamma$  basé sur la tension de surface est défini par

$$Ca_\gamma = \frac{\eta U}{\gamma} \quad (1.16)$$

avec  $\eta$  la viscosité du fluide externe et  $U$  la vitesse caractéristique de l'écoulement externe. Il compare les efforts visqueux sur l'interface à la réponse due à la tension de surface. Ainsi, [Tay32] montre que pour de faibles valeurs de  $Ca_\gamma$ , la déformation de la goutte évolue linéairement avec l'augmentation de  $Ca_\gamma$ . [Tay34] illustre par des mesures expérimentales l'influence du contraste de viscosité entre les fluides internes et externes sur la déformation d'une goutte plongée dans un écoulement extensionnel plan, phénomène que [Cox69] analyse par une approche quasi-sphérique dans le cas d'un écoulement linéaire et [SBL86] étudie dans le cas d'un écoulement cisailé.

Dans un écoulement de cisaillement pur, l'augmentation du taux de cisaillement (ou du nombre capillaire  $Ca_\gamma$ ) mène à une augmentation de l'élongation de la goutte jusqu'à une valeur critique à partir de laquelle la goutte se fragmente. Différentes approches permettent de modéliser avec précision cette dynamique dans le cas quasi-sphérique [BA73 ; RA78] ou d'un corps fin très étiré [BL86a ; HA79]. Les études numériques de [KPS94 ; LRR00 ; Cri+03] précisent davantage la relation entre le nombre capillaire critique et le contraste de viscosité.

Lorsque des particules tensioactives s'adsorbent à l'interface de la goutte de manière non uniforme ou lorsqu'un gradient de température est imposé à l'interface, un gradient de tension de surface apparaît. Dans ce cas, l'interface subit de nou-

velles contraintes par effet Marangoni qui modifient la dynamique de la goutte [LK69]. En particulier, les résultats de [SL90] montrent que les contraintes dues aux effets Marangoni stabilisent l'interface de la goutte dans le cas d'un écoulement extensionnel.

La rupture ("breakup") d'une goutte fait partie des phénomènes très étudiés par la communauté scientifique. Lors de l'étirement de la goutte et sa déstabilisation, on observe des ondes capillaires à l'interface [MCM75] ou encore des gouttes de petite taille qui s'échappent par les extrémités [Gra82]. Ce dernier phénomène de *tip-streaming* est par exemple utilisé pour produire des émulsions monodisperses [De 93; ETS01]. Les critères de rupture ont été étudiés expérimentalement [BL86a], analytiquement [Nav99; BCL02] et numériquement [CBL98; Cri+03; WZD02; CBL01]; en effet, le phénomène de rupture (et de coalescence) est un phénomène qu'on retrouve dans les émulsions, très utilisées dans le domaine de la microfluidique et suscite donc un grand intérêt de la part de la communauté scientifique. Si la goutte est initialement étirée par l'écoulement et qu'on arrête subitement l'écoulement, on observe un pincement aux extrémités de la goutte qui, si les propriétés interfaciales sont adaptées, peuvent mener à une rupture [Gra82; Tay34].

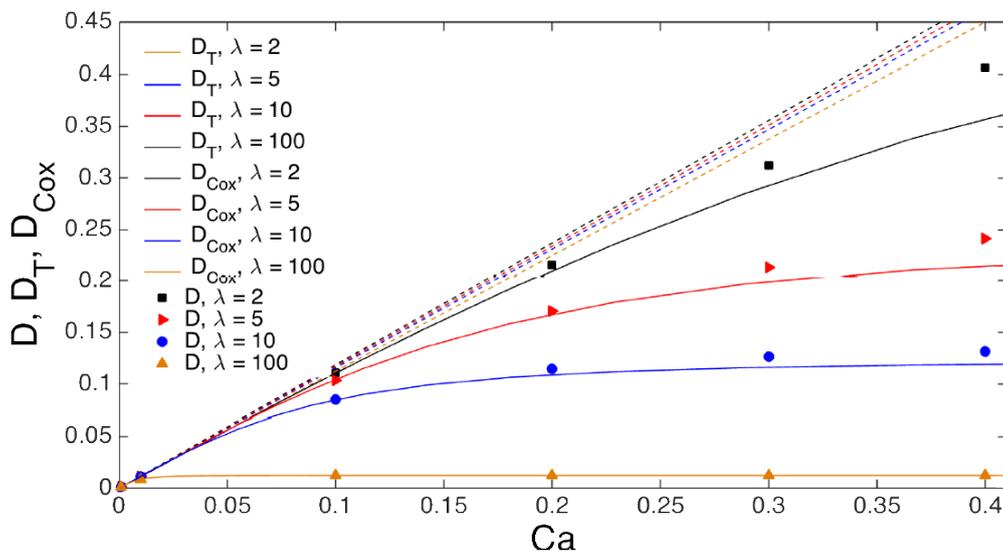


FIGURE 1.5 – Déformation d'une goutte sans surfactants avec  $D$  le paramètre de Taylor et  $\lambda = \eta_i/\eta_e$  le contraste de viscosité. Les données sont issues de [Gou+16] et sont comparées aux résultats  $D_T$  de [Tay34] et  $D_{Cox}$  de [Cox69].

La viscosité interfaciale issue de la présence de surfactants à l'interface joue un rôle important dans les dynamiques mentionnées ci-dessus. En effet, [Flu80a]

calcule l'influence des deux viscosités de cisaillement et de dilatation sur la déformation et l'orientation d'une goutte dans un écoulement hyperbolique ainsi que dans un écoulement de Couette. Cette influence peut avoir des conséquences sur les suspensions : [Poz94] observe un phénomène de rhéofluidification dans une émulsion de gouttes avec interface visqueuse. Enfin, [AW79] modélisent l'influence d'un gradient de tension de surface le long de l'interface en combinaison avec les viscosités interfaciales, dans le cas de gouttes recouvertes de surfactants par exemple. Cette étude propose également une mesure d'une combinaison linéaire des viscosités interfaciales, en écho aux mesures expérimentales réalisées par [WSS74]. L'impact des viscosités interfaciales telles que définies dans l'équation 1.11 sera étudié plus en détail dans la partie de ce manuscrit.

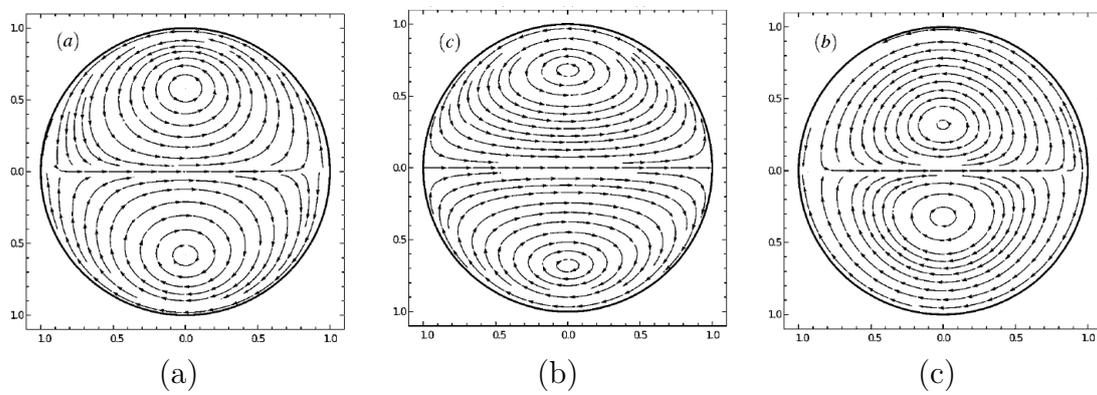


FIGURE 1.6 – Champ de vitesse dans le plan  $(x, y)$  à l'intérieur d'une goutte sphérique plongée dans un écoulement de Poiseuille et sans contraste de viscosité [Sch+11]. (a) : Pas de viscosité interfaciale. (b) : Viscosité interfaciale de cisaillement uniquement. (c) : Viscosité interfaciale de dilatation uniquement. On notera que la position des points de stagnation évoluent de manière opposée avec les viscosités de cisaillement et élongationnelle.

## 1.3 La vésicule : définition et dynamique

Une vésicule est un volume fluide imité par une membrane, résultat de l'auto-organisation des lipides en bicouche. Elle est plongée dans une solution aqueuse.

### 1.3.1 Propriétés membranaires

Bien que la membrane ait des caractéristiques typiques d'un fluide à deux dimensions, comme l'absence d'une configuration de référence, les forces moléculaires qui lient les composants élémentaires de la membrane engendrent une

résistance à deux types de déformation de l'interface : la flexion et l'extension-contraction. Il est donc nécessaire d'inclure un modèle physique de la membrane.

En premier lieu, on retrouve la continuité des vitesses, une conséquence de l'imperméabilité de la membrane :

$$\frac{D\mathbf{v}}{Dt} = \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = \mathbf{v}^m \quad (1.17)$$

avec  $\mathbf{v}^m$  la vitesse membranaire.

La membrane d'une vésicule a une épaisseur ( $\approx 5$  nm) très faible vis à vis de la taille caractéristique de l'objet ( $\approx 10\mu\text{m}$ ), ce qui permet de la considérer comme une surface. Soit un élément de la membrane de surface  $A_0$ . Cet élément peut être sollicité mécaniquement par différents modes de déformation, illustrés sur la figure 1.7 : une extension, un cisaillement ou une flexion.

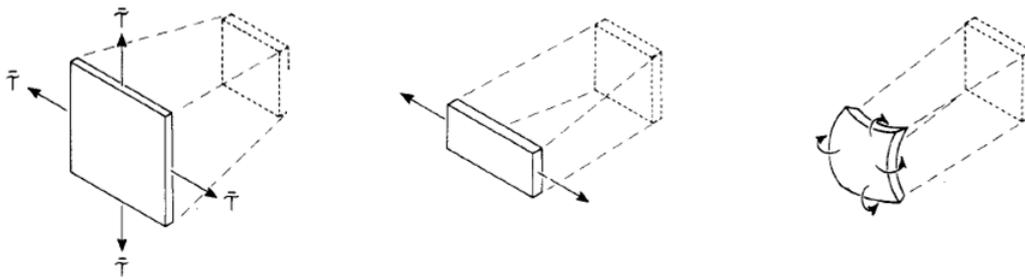


FIGURE 1.7 – Différentes déformations possibles pour une surface à deux dimensions. **De gauche à droite** : extension, cisaillement et flexion (tiré de [EN87]).

L'extension est définie comme une augmentation de la surface dans le plan de la surface. Cette extension a une amplitude définie comme  $dA = A - A_0$  avec  $A$  la surface de l'élément étiré. Dans ce cas, on définit  $K$  le module de compressibilité pour de petites déformations tel que l'énergie nécessaire pour étirer la membrane s'écrit, au premier ordre :

$$E_{ex} = \frac{1}{2}K \frac{dA^2}{A_0} \quad (1.18)$$

La tension exercée dans la membrane s'exprime alors comme :

$$F_{ex} = -\frac{\partial E_{ex}}{\partial A} = -K \frac{dA}{A_0} \quad (1.19)$$

La tension exercée par la membrane s'oppose bien à sa déformation. [Dim+06]

étudie expérimentalement les propriétés mécaniques de la membrane et détermine une valeur de l'ordre de  $K_{ex} \sim 250 \text{ mN.m}^{-1}$ . Dans le cas d'une vésicule plongée dans un écoulement, considérons un cisaillement typique  $\dot{\gamma} \approx 1 \text{ s}^{-1}$ , le rayon de la vésicule  $R_0 \approx 10 \mu\text{m}$  et la viscosité de l'eau  $\eta = 1 \text{ mPas}$ . L'équilibre entre les forces hydrodynamiques et les forces d'extension s'exprime ainsi

$$\frac{2F_{ex}}{R_0} \sim \eta\dot{\gamma} \sim 10^{-3} \text{ Pa} \quad (1.20)$$

$$K \frac{dA}{A_0} \frac{1}{R_0} \sim 10^{-3} \quad (1.21)$$

$$\frac{dA}{A_0} \sim \frac{10^{-3} R_0}{K} \sim 4.10^{-8} \quad (1.22)$$

Au vu des résultats ci-dessus, on peut considérer que la déformation liée à l'extension ou la contraction de la membrane est négligeable dans les cas étudiés. Il y a une condition d'incompressibilité locale de la membrane qui s'ajoute aux contraintes membranaires de la vésicule. Cette condition est plus forte qu'une simple conservation globale de l'aire. Cette condition s'exprime par la relation

$$\nabla_s \cdot \mathbf{v}^m = 0 \quad (1.23)$$

Cette contrainte est associée à un multiplicateur de Lagrange local, qu'on notera  $\gamma$ , et qui a la dimension d'une tension de surface. Ce multiplicateur de Lagrange local est l'équivalent surfacique de la pression volumique dans le cas d'un fluide incompressible : il n'est pas déterminé par une loi de comportement, mais s'adapte de façon à ce que le champ de vitesse satisfasse la contrainte. Par conséquent, pour une vésicule, cela se traduit par une "tension de surface" variable, dépendant des conditions d'écoulement et de la forme. La densité de forces interfaciale associée à la membrane d'une vésicule est alors :

$$\mathbf{f}^\gamma(\mathbf{x}) = \nabla_s \gamma + 2\gamma H \mathbf{n} \quad (1.24)$$

La membrane de la vésicule n'ayant pas de structure de référence et étant considérée comme un fluide, la notion de module de cisaillement n'est pas pertinente. Cependant, comme tout fluide newtonien, ce fluide exhibe une résistance à la mobilité due soit au frottement des molécules au sein d'une monocouche, soit au frottement entre les deux monocouches de la membrane lipidique. La seconde sera négligée dans la suite du manuscrit au profit de la première. La continuité de la vitesse est donc assurée à l'interface

$$\mathbf{v}^e = \mathbf{v}^i = \mathbf{v}^m \quad (1.25)$$

Pour la modélisation des effets visqueux liés à la friction au sein d'une monocouche, on utilise la même modélisation que pour une goutte avec surfactants

[Scr60]. Mais, puisque le champ de vitesse sur l'interface d'une vésicule ou d'un polymersome est incompressible, seule la viscosité de cisaillement surfacique interviendra. Pour déterminer l'influence de cette viscosité sur la dynamique de la vésicule ou du polymersome, on définit la longueur de Saffman-Delbrück ([Saf76]) :

$$L_{SD} = \frac{\mu_s}{\eta} \quad \frac{f_\mu}{f_\eta} \sim \frac{L_{SD}}{R_0} \quad (1.26)$$

avec  $\mu_s$  la viscosité membranaire de cisaillement,  $\eta$  la viscosité du fluide environnant et  $R_0$  le rayon effectif de l'objet considéré. Lorsque  $L_{SD} < R_0$ , la viscosité membranaire a une influence négligeable sur la dynamique de l'objet comparée à celle de la viscosité interne. Pour un liposome,  $\mu_s^{ves} \sim 10^{-9}$  Ns/m [Dim+99] et  $\eta \sim 10^{-3}$  Pa.s dans la plupart des études réalisées : la longueur  $L_{SD}^{ves} \sim 1\mu\text{m}$  est donc inférieure à la dimension caractéristique des vésicules étudiées, de l'ordre de  $R_0 \sim 10 - 100\mu\text{m}$ . Dans ce manuscrit, on négligera les effets de la viscosité de cisaillement pour les objets que l'on appelle "vésicule" et on les considérera pour les objets que l'on appelle "polymersomes". Le troisième et dernier type de déformation envisagé ici est la flexion de la membrane. Cette réponse à une sollicitation mécanique ne peut être étudiée de manière triviale dans le cas d'une membrane phospho-lipidique. En effet, celle-ci possède différentes régions dans son épaisseur de caractéristiques mécaniques qui leurs sont propres. Il est donc nécessaire de modéliser cette résistance à la flexion.

Le modèle utilisé pour décrire l'énergie associée à la flexion de la surface est celui de Canham-Helfrich ([Can70]), qui prend en compte les différentes propriétés géométriques de l'interface considérée :

$$E_b = \frac{\kappa}{2} \int_S (2H - c_0)^2 dS + \kappa_G \int_S K dS \quad (1.27)$$

avec  $\kappa$  le module de flexion,  $H$  la courbure moyenne,  $c_0$  la courbure spontanée,  $\kappa_G$  le module de courbure gaussienne et  $K = c_1 c_2$  la courbure gaussienne.

La courbure spontanée  $c_0$  est causée par une asymétrie dans la composition de la membrane, plus particulièrement dans les deux monocouches qui la composent ([Obe97]). Pour simplifier, la courbure spontanée est supposée nulle, le cas le plus répandu dans la littérature.

D'après le théorème de Gauss-Bonnet, la deuxième intégrale dans l'équation 2.20 est une constante qui ne dépend que de la topologie de la forme (présence de trous). La force surfacique étant calculée comme la variation de l'énergie 2.20, la densité surfacique de forces liées à la flexion s'écrit

$$\mathbf{f}^\kappa(\mathbf{x}) = -\kappa(2\Delta_S H + 2H(H^2 - K))\mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad (1.28)$$

avec  $\mathbf{n}(\mathbf{x})$  la normale au point  $\mathbf{x}$  tournée vers le fluide externe et  $\Delta_S H$  la di-

vergence surfacique de la courbure moyenne. Le signe négatif est issu de la convention de signe utilisée, qui considère négative la courbure moyenne  $H$  d'une sphère.

L'équilibre mécanique dans la membrane s'écrit donc

$$\bar{\bar{\sigma}} \cdot \mathbf{n} + \mathbf{f}^{\text{int}} = \mathbf{0} \quad (1.29)$$

avec  $\bar{\bar{\sigma}} \cdot \mathbf{n} = (\bar{\bar{\sigma}}_e - \bar{\bar{\sigma}}_i) \cdot \mathbf{n}$  le saut d'efforts fluides à l'interface et  $\mathbf{f}^{\text{int}}$  la densité de forces interfaciales telle que

$$\mathbf{f}^{\text{int}} = \mathbf{f}^\gamma + \mathbf{f}^\kappa \quad (1.30)$$

### 1.3.2 État de l'art

Pour un volume  $V$  et une surface membranaire  $A$  donnée, on peut donc trouver une ou plusieurs formes en trois dimensions qui minimi l'énergie de flexion  $E^b$ , modélisée dans cette étude par le modèle de Canham-Helfrich (eq. 2.20) ou modèle à courbure spontanée. Ce modèle étant invariant par multiplication d'un scalaire, on peut montrer que chaque forme peut être caractérisée par un paramètre unique, le volume réduit  $v$ , tel que

$$v = \frac{V}{\frac{4\pi}{3} \left(\frac{A}{4\pi}\right)^{3/2}} \quad (1.31)$$

Ce volume réduit est égal ou inférieur à 1. Il mesure le dégonflement de la forme de la vésicule.  $v = 1$  correspond à une sphère qui est indéformable dans le cadre du modèle et ce quel que soit l'écoulement.  $v < 1$  correspond à une vésicule dégonflée comme le serait un ballon. Ce volume réduit peut être contrôlé expérimentalement en jouant sur la différence de pressions osmotiques entre l'interne et l'externe.

Une mesure équivalente du volume réduit, également utilisée dans un certain nombre d'études de la littérature, est l'excès d'aire  $\Delta$  défini tel que

$$A = (4\pi + \Delta)R_0^2 \quad (1.32)$$

avec  $R_0$  le rayon d'une sphère de même volume  $V$  que la vésicule.

Lorsque la vésicule est peu dégonflée par rapport à la sphère ( $1 > v > 0.75$ ), la forme prolata (figure 1.8) est l'unique forme d'énergie de flexion minimale. Pour des dégonflements moyens ( $0.75 > v > 0.59$ ), on peut déterminer deux formes minimisant l'énergie de flexion pour une vésicule : la forme prolata proche d'un ellipsoïde avec un seul grand axe et la forme oblate proche d'un ellipsoïde avec deux grands axes égaux. Bien que ces deux formes co-existent, à chaque volume réduit  $v$  correspond une forme correspondant au minimum global de l'énergie

de flexion  $E^b$ , comme présenté figure 1.8. Pour  $0.75 > v > 0.652$ , la forme prolata possède une énergie de flexion inférieure à la forme oblate, tandis que pour  $0.592 < v < 0.652$ , c'est la forme oblate qui sera minimum global. Dans le manuscrit, nous considérons uniquement ces deux familles de formes, notre étude ne portant que sur des volumes réduits supérieurs à 0.59

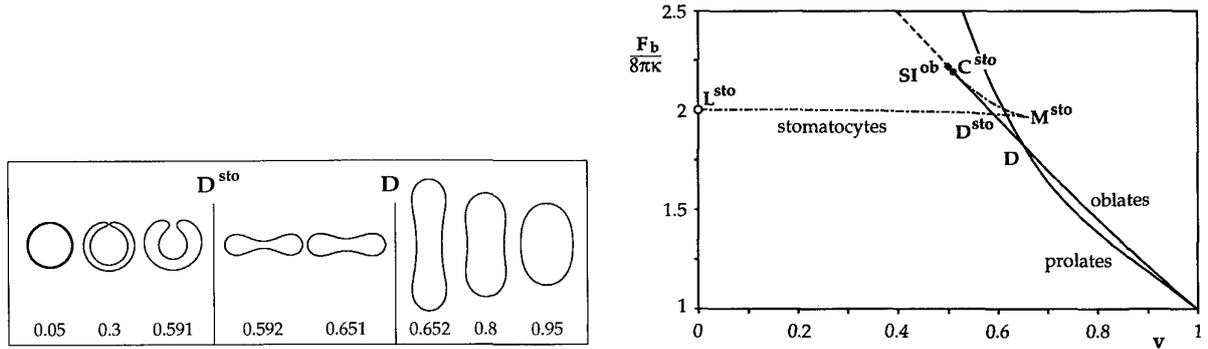


FIGURE 1.8 – **Droite** : Forme de minimum d'énergie de flexion global selon le modèle de Canham-Helfrich [SBL91]. **Gauche** : Diagramme des différentes branches de solution pour l'énergie de flexion d'une membrane de vésicule [SBL91].  $F^b$  correspond à l'énergie de flexion.

La figure 1.8 illustre bien la richesse des formes adoptées par une vésicule en fonction de sa déformabilité, et ce sans écoulement externe. La présence de sollicitations hydrodynamiques extérieures fait apparaître des dynamiques proches du globule rouge ; ainsi, dans un écoulement de Poiseuille suffisamment éloigné des parois, on observe l'apparition de formes axisymétriques soit avec une partie arrière concave, en forme d'obus, soit avec une partie arrière convexe, semblable à un parachute [DVM09 ; Cou+12 ; Tro+15]. Ces formes sont conditionnées d'une part par le volume réduit  $v$  défini ci-dessus, d'autre part par la valeur maximale du profil de vitesse de l'écoulement externe. Afin d'estimer le rapport entre les sollicitations hydrodynamiques et les contraintes de flexion au sein de la membrane, on définit le nombre capillaire  $Ca_\kappa$  tel que

$$Ca_\kappa = \frac{V\eta R_0^2}{\kappa} \quad (1.33)$$

On retrouve ici les temps caractéristiques  $R_0/V$  de l'écoulement externe et  $\eta R_0^3/\kappa$  de réponse en flexion de la membrane, avec  $\eta$  la viscosité du fluide externe et  $R_0$  le rayon effectif de la vésicule.

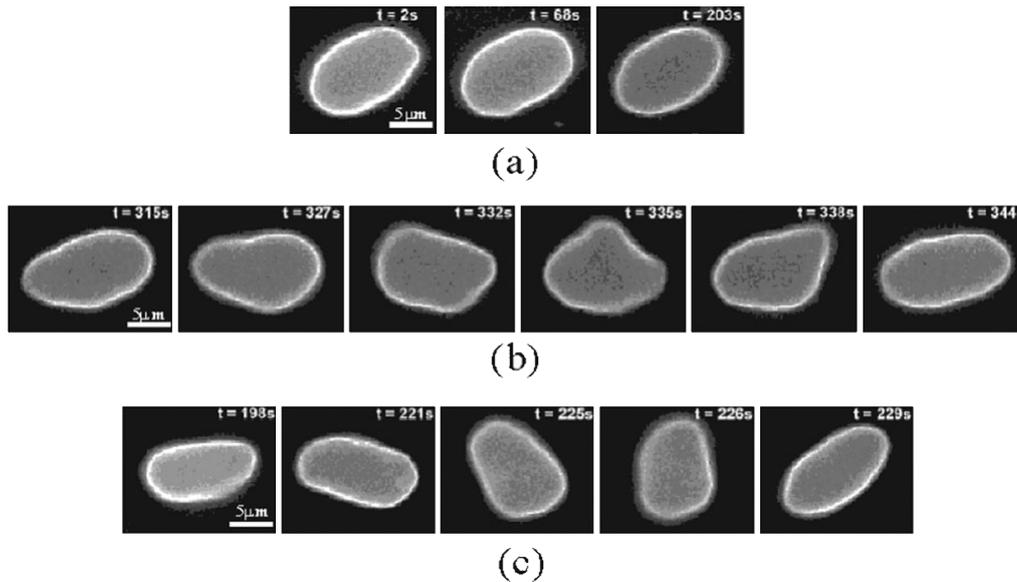


FIGURE 1.9 – Dynamique d’une vésicule dans un écoulement cisailé. (a) Tank-treading. (b) Vacillating-breathing . (c) Tumbling. [DKS09]

Lorsqu’on soumet une vésicule à un écoulement cisailé ou à un écoulement linéaire, il apparaît différentes dynamiques en fonction des propriétés du système étudié.

Le phénomène de *tank-treading* est défini par une forme ellipsoïdale fixe et inclinée par rapport à la direction de l’écoulement. La membrane tourne autour de cette forme fixe (on parle de mouvement de chenille de char) : les lignes de courant interne suivent ce mouvement et sont donc ellipsoïdales (figure 1.9 (a)). Cette dynamique, décrite théoriquement par [KS82] en utilisant un modèle d’ellipsoïde à forme fixe, a par la suite été observée numériquement par [Kra+96], puis expérimentalement [KS05 ; AV08] pour une vésicule, et enfin retrouvée par des modèles analytiques n’imposant pas une forme fixe [Mis06 ; VG07]... C’est une dynamique que l’on retrouve aussi pour d’autres types de particules déformables comme les globules rouges [ALV02] et les microcapsules [Lou+16].

Lorsque la vésicule subit un mouvement de rotation autour de son axe orthogonal au plan de l’écoulement sans subir de déformation notable (figure 1.9 (c)), on parle alors de *tumbling*. Dans ce cas, la vésicule a une dynamique proche de celle qu’aurait une particule solide de même forme. Néanmoins, ce type de dynamique occasionne de légères variations des axes principaux de la vésicule. Le *tumbling* a fait l’objet d’études analytiques [RBM04] mais également expérimentales [KS06]. On retrouve par ailleurs ces deux derniers types de mouvement pour un globule rouge [FBM14].

La transition du *tank-treading* au *tumbling* a fait l’objet de nombreuses études qui ont mis en lumière l’apparition d’une troisième dynamique : le *vacillating-breathing* (figure 1.9 (b)). La vésicule subit alors une oscillation périodique au-

tour d'un axe orthogonal au plan de l'écoulement combinée avec une déformation périodique de ses axes principaux [Mis06].

Ces dynamiques apparaissent par exemple dans les diagrammes de phase d'une vésicule sous écoulement cisailé [DKS09 ; KFM09 ; ZSS11] (figure 1.10). Lorsque le nombre capillaire est petit devant l'unité, la résistance à la flexion de la membrane domine la réaction de la vésicule à l'écoulement. Celle-ci se comporte alors comme un ellipsoïde de forme fixe et on retrouve les dynamiques de *tank-treading* et de *tumbling* décrites par [KS82] en fonction du contraste de viscosité. Cependant, dès lors que l'influence des contraintes hydrodynamiques grandit, la membrane lipidique se déforme et la section transverse de la vésicule subit une compression par l'écoulement externe. La réaction de l'interface peut alors être considéré comme un flambage et la forme qui apparaît est un carré, ce qu'on observe dans le cas du *vacillating-breathing*. Il apparaît alors deux valeurs de transition pour le contraste de viscosité à partir d'un certain nombre capillaire. De la même manière, le volume réduit  $v$  étant une mesure de la déformabilité de la membrane, le diagramme de phase représenté figure 1.10 évolue également lorsque  $v$  varie.

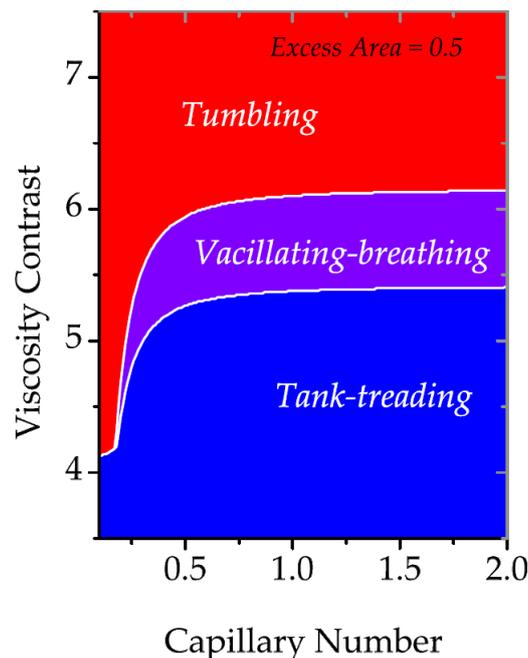


FIGURE 1.10 – Diagramme de phase d'une vésicule de volume réduit  $v = 0.943$  [KFM09].

Si l'objet étudié est placé proche d'une paroi, la déformabilité de l'interface joue un rôle prépondérant dans le phénomène observé. En effet, un objet symétrique indéformable placé près d'une paroi dans un écoulement de Stokes reste

à distance constante de la paroi : c'est la conséquence de la réversibilité des équations de Stokes. Cependant, le changement de forme de la vésicule permet à celle-ci de migrer loin de la paroi. Ce phénomène a été étudié dans le cas d'un écoulement cisailé numériquement [SS01], expérimentalement [Cal+08; AV05] et analytiquement [CM99; Sei99]. Ces résultats révèlent l'importance du film de lubrification situé entre la vésicule et la paroi dans la déformation de la vésicule et donc l'initiation du mouvement de migration. Cette dynamique sera décrite plus précisément dans le chapitre 5.4 consacré à la dynamique d'une vésicule sous écoulement.

### 1.3.3 Polymersome, particularités et influence sur la dynamique de la membrane

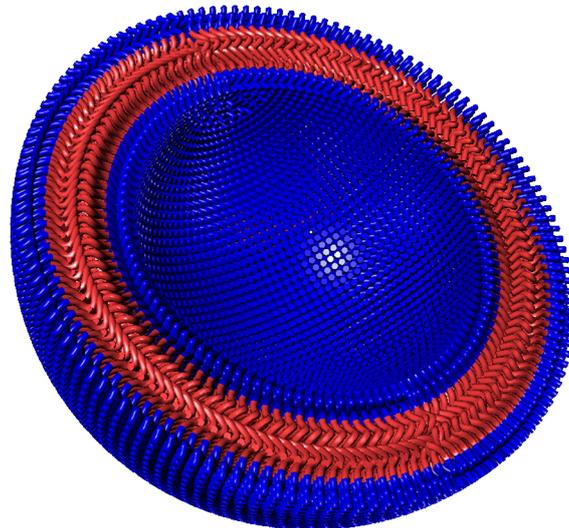


FIGURE 1.11 – Vue d'artiste d'un polymersome, tiré de [LF12]. La partie bleue correspond à la la partie hydrophile du polymère, la partie rouge à la partie hydrophobe.

Les polymersomes sont, comme les vésicules, des gouttes enrobées par des composants élémentaires qui forment une membrane autour de celles-ci. Dans le cas présent, cette membrane est constituée de copolymères di-blocs ou tri-blocs avec une partie hydrophile (deux dans le cas de polymères tri-blocs) et une partie hydrophobe. De par sa composition et sa structure, cet objet présente de nombreux points communs dans son comportement mécanique avec une vésicule, comme illustré dans le tableau 1.1. On retrouve ainsi une résistance de la membrane à une sollicitation en flexion ainsi qu'une incompressibilité locale de surface, due à une résistance beaucoup plus importante à l'étirement et à la

	Vésicule	Polymersome	Globule rouge
Rayon (m)	$10^{-5} - 10^{-4}$	$10^{-5} - 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-6}$
Module de flexion (kT)	11 – 30	40 – 460	100
Module d'étirement ( $10^{-3}$ N/m)	$250 \pm 2$	80 – 100	400
Viscosité surfacique de cisaillement (N/ms)	$10^{-8}$	$15 \cdot 10^{-6}$	$10^{-6}$
Épaisseur ( $10^{-9}$ m)	3 – 5	10 – 50	2
Perméabilité aqueuse ( $10^{-6}$ m/s)	15 – 150	0.7 – 10	2.2 – 8.1

TABLE 1.1 – Propriétés membranaires d'une vésicule, d'un polymersome et d'un globule rouge.

dilatation que les forces mises en jeu généralement pour ce système.

En effet, on observe que la membrane constituée de copolymères présente une plus grande résistance à la mobilité de ses constituants que celle d'une vésicule. De la même manière que pour la membrane d'une vésicule, on définit la longueur de Saffman-Delbrück [Saf76]

$$L_{SD} = \frac{\mu_S}{\eta} \quad \frac{f_\mu}{f_\eta} \sim \frac{L_{SD}}{R_0} \quad (1.34)$$

avec  $\mu$  la viscosité membranaire de cisaillement,  $\eta$  la viscosité du fluide environnant et  $R_0$  le rayon effectif du polymersome. La longueur  $L_{SD}^{poly} \sim 1\text{mm}$  est bien plus grande que la dimension caractéristique du polymersome [Dim+02]. Il est donc nécessaire de prendre en considération les effets de la viscosité membranaire dans l'étude de la dynamique d'un polymersome sous écoulement.

Par analogie avec la dynamique de l'interface d'une goutte sur laquelle sont déposés des surfactants, on peut définir pour un polymersome un tenseur des contraintes visqueuses similaire à celui formulé dans l'équation 1.11 :

$$\sigma_{\text{visc}} = 2\mu_s \mathbf{e} \quad (1.35)$$

$\mu_s$  la viscosité surfacique de cisaillement,  $\mathbf{e}$  le tenseur des taux de déformation surfaciques et  $\mathbf{P} = \mathbf{P} = \mathbf{I} - \mathbf{nn}^T$  le tenseur de projection sur la surface de l'interface, et où à nouveau la viscosité de dilatation n'apparaît pas car le champ de vitesse est incompressible surfaciquement.

La densité de forces surfaciques dans la membrane intègre donc une nouvelle contribution :

$$\mathbf{f}^{\text{int}}(\mathbf{x}) = \mathbf{f}^\gamma + \mathbf{f}^\kappa + \mathbf{f}^{\text{visc}} \quad \mathbf{f}^{\text{visc}} = \nabla_S \cdot \sigma_{\text{visc}} \quad (1.36)$$

Depuis les premiers travaux sur les polymersomes à la fin du siècle dernier [Boh+99; Cor+98; Ort+05], la dynamique d'un polymersome sous écoulement peut être rapprochée de différentes études concentrées sur d'autres objets de la

matière molle : goutte avec une interface visqueuse [Flu80a ; Gou+16] ou vésicule avec contraste de viscosité entre le fluide externe et le fluide interne [LTV07 ; KFM09 ; DKS09]. Ces derniers travaux mettent en évidence la complexité de la dynamique membranaire d'une vésicule pour laquelle la différence de viscosité entre le fluide interne et le fluide externe joue un rôle sur la dynamique. [LTV07] construit un diagramme de phase du comportement d'une vésicule sous écoulement cisailé avec pour variables le contraste de viscosité et le volume réduit, ajoutant dans les paramètres utilisés la viscosité membranaire de cisaillement. Ces résultats peuvent donc être une première estimation de la dynamique d'un polymersome sous écoulement car on y retrouve les propriétés caractéristiques de celui-ci. En effet, on retrouve bien (comme il sera montré dans ce manuscrit) pour des polymersomes les dynamiques observées pour des vésicules dans un écoulement cisailé ou linéaire et présentées précédemment : le *tank-treading*, le *vacillating-breathing* et le *tumbling*.

Les études concernant l'effet de la viscosité interfaciale sur une vésicule ou sur un polymersome sont assez peu nombreuses : [Hon+13] proposent d'utiliser la vitesse de recirculation sur la membrane d'une vésicule adhérente sur une paroi et immergée dans un écoulement cisailé pour déterminer la viscosité interfaciale. D'autre part, cet effet est souvent intégré dans les travaux théoriques par l'utilisation d'une viscosité effective incluant l'effet de la viscosité interfaciale [KS82 ; LTV07]. Enfin, quelques études numériques du groupe de G. Gompper [NG04 ; NG05 ; NG07] montrent une influence de la viscosité interfaciale sur la dynamique d'un polymersome. Nous reviendrons sur ces études dans la partie 5.5. Nous aborderons dans la dernière partie de ce manuscrit l'influence de la viscosité membranaire telle que décrite dans l'équation 1.11 sur la dynamique d'un polymersome. Ces résultats seront comparés à la littérature et permettront une première approche vers la compréhension des phénomènes qui apparaissent lors de l'immersion d'un polymersome dans un écoulement linéaire.

## 2 Méthodes numériques

### 2.1 Suivi d'interface sous écoulement

#### 2.1.1 Modèles numériques usuels

Dans la littérature, différents modèles numériques sont proposés pour le suivi d'une interface entre plusieurs milieux fluides. Ces méthodes doivent posséder plusieurs propriétés pour les rendre les plus efficaces possible : décrire correctement la dynamique de l'interface soumise à des sollicitations à différentes échelles, être robustes en cas de discontinuité géométrique et efficaces pour le calcul des propriétés algébriques (normale et tangente à l'interface, courbure, etc.) très utilisées dans l'analyse des interactions entre deux milieux. Il existe deux catégories principales de modèles numériques pour le suivi d'interface. Les modèles eulériens représentent l'interface comme un champ scalaire dont la dynamique est décrite par une équation de transport. Les modèles lagrangiens offrent une description explicite de l'interface, et la décrivent par des objets numériques reliés entre eux dans le domaine de calcul et transportés par le champ de vitesse local.

Parmi les méthodes eulériennes, la méthode Volume of Fluid (VOF [[HN81](#)]) définit le domaine de calcul par un maillage fixe dans lequel évoluent plusieurs phases. Basée sur la conservation de la masse au sein de chaque phase, l'évolution de l'interface entre les différentes phases est suivie par l'intermédiaire d'une distribution de fraction volumique transportée par un champ de vitesse. La méthode Level Set [[Set99](#)] définit l'interface par l'intermédiaire d'une fonction dont la valeur s'annule à la limite entre les différentes phases. Cette fonction est associée à une équation de convection qui permet de suivre l'évolution de cette frontière au cours du temps. Plus particulièrement, la méthode de champ de phase (Phase Field [[Lan86](#)]) définit les différentes phases étudiées par l'intermédiaire d'une fonction caractéristique, qui définit chaque phase par un champ dont la valeur est -1 dans une phase et +1 dans l'autre, avec une transition continue entre les deux extrema.

Il existe également des méthodes hybrides Euler-Lagrange telles que la méthode des frontières immergées (Immersed Boundary Method [[Pes02](#)]). Cette méthode combine un maillage eulérien pour le fluide et un maillage lagrangien pour l'interface. Alors que les équations de mécanique des fluides sont appliquées sur le

maillage du fluide environnant, les forces interfaciales sont discrétisées à l'aide de fonctions de Dirac, introduites ensuite dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement du fluide comme une force externe. L'interface a alors un déplacement correspondant au déplacement du volume fluide qui l'entoure.

Enfin, les méthodes lagrangiennes nécessitent la représentation de l'interface uniquement par un ensemble de points interconnectés. Pour éviter la discrétisation du fluide environnant, il est possible d'utiliser une méthode d'éléments de frontière (Boundary Element Method) qui exploite la propriété du champ considéré à être résolu par une intégrale définie uniquement sur l'interface. Très utilisées en acoustique ou en électromagnétisme, ces méthodes sont également applicables dans la limite des écoulements rampants (ou écoulements de Stokes).

On retrouve dans les méthodes numériques utilisées pour simuler la dynamique des objets déformables différentes grandes catégories, selon la manière de modéliser l'interface et l'écoulement environnant. Les méthodes continues, telles que celles basées sur les intégrales de frontière [ZP95 ; Kra+96], permettent d'utiliser les fonctions de Green associées aux équations de Stokes pour obtenir le champ de vitesse à partir des forces membranaires. L'utilisation de méthodes spectrales [ZSS11] permet d'améliorer ces méthodes de résolution. Les méthodes de frontière immergée [KL10] considèrent la membrane comme une surface viscoélastique incompressible plongée dans un fluide incompressible lui aussi, tandis que les méthodes de champ advecté (ou champ de phase [BGN15 ; BM03]) assimilent la membrane à une région continue où varient très fortement les champs calculés lors de la simulation, entre le fluide externe et le fluide interne.

Les méthodes discrètes modélisent la membrane ou le fluide comme un ensemble de particules qui interagissent entre elles. Ainsi, la dynamique de collision multi-particules [NG04] modélise la membrane par des monomères reliés entre eux par des ressorts harmoniques, et plongés dans un fluide représenté par des particules suivant un trajet ballistique. Les méthodes de dynamique dissipative [SU07] font également partie des méthodes discrètes utilisées dans la simulation numérique de membranes lipidiques.

Pour les écoulements à bas nombre de Reynolds, typiques de ces objets, la méthode des éléments de frontière (BEM) simplifie énormément le couplage des solveurs fluide et solide, puisque seul un maillage de l'interface est nécessaire. La même représentation numérique peut être utilisée pour les deux solveurs. Cependant, la BEM utilise typiquement des maillages  $C^0$  alors qu'un calcul direct des forces de flexion nécessite au moins une représentation  $C^4$  de la position, puisque des dérivées quatrièmes apparaissent dans la force de flexion. Pour contourner cette difficulté, des méthodes particulières peuvent être utilisées pour calculer les forces de flexions sur un maillage  $C^0$ , en utilisant soit une reconstruction lo-

cale de la surface [YB12; FBM14; MGN14], ou en construisant une approximation discrète de l'opérateur de Laplace-Beltrami [BFM11; BLJ11; Tro+15]. D'un autre côté, des méthodes basées sur une représentation spectrale de l'interface ont été développées [Zha+10; Vee+11; ZSS11; Rah+15], mais le caractère global des fonctions de base implique que toute l'interface doit être raffinée même si la déformation est hautement localisée.

Il est possible de contourner la condition  $C^4$  si les forces sont calculées avec une formulation faible en utilisant une formulation éléments finis, qui nécessite seulement que l'approximation numérique de la position de l'interface soit de classe  $H^2$ . [COS00] montrent que les surfaces de subdivision satisfont cette condition, et peuvent être utilisées pour modéliser précisément les coques minces. De plus, récemment, des codes numériques basés sur les surfaces de subdivision ont été développés pour des capsules [Le10; LW11; HCS12] ou des vésicules [FK06; MK08; ZSS11; SZS14]. Dans cette thèse, nous utilisons un code développé récemment [BLJ17] qui utilise des surfaces de subdivision à la fois pour le calcul des forces interfaciales mais aussi pour le calcul des écoulements par la méthode BEM, dans l'esprit des approches isogéométriques. En effet, le développement rapide de l'analyse isogéométrique [HCB05] au cours des dix dernières années a montré que l'utilisation d'une représentation unique et cohérente de la géométrie tout au long du processus de calcul permet de grandement améliorer la qualité des résultats obtenus. L'idée originale vient du fait que dans les processus d'ingénierie, des logiciels de CAO sont utilisés pour dessiner les pièces mécaniques, et utilisent une représentation des surfaces à l'aide de courbes de Bézier, de splines ou encore de NURBS (Non Uniform Rational Basis Spline). D'un autre côté, les logiciels de calcul, souvent basés sur les éléments finis, utilisent des représentations différentes, généralement basées sur les éléments de Lagrange linéaires et quadratiques. Donc l'analyse par éléments finis commence par une erreur de modélisation au sens où la forme produite par le logiciel de CAO ne peut pas être représentée exactement dans le modèle éléments finis. Ainsi, pour des formes géométriques aussi simples qu'un disque en deux dimensions, l'utilisation d'éléments triangulaires linéaires ne permet pas de représenter exactement cette forme, sauf dans la limite d'un raffinement infini. Et ce, alors que des formes géométriques comme les cercles ou les ellipses peuvent être représentées exactement avec des NURBS, même avec un nombre fini d'éléments. L'idée de l'analyse isogéométrique est donc d'utiliser la même approximation pour la discrétisation de la géométrie et pour la discrétisation de la solution, ce qui amène une amélioration très significative de la qualité de la solution [HCB05]. Alors que cette approche a été utilisée avec une méthode d'éléments de frontière pour des simulations d'élastostatique, d'aéroacoustique, ou d'électrostatique, à notre connaissance elle n'a été utilisée dans le contexte des écoulements de Stokes que par [HAD14] où il n'y a pas de déformation de l'interface et [JVA15] pour des gouttes et des membranes inextensibles. Récemment, une méthode isogéo-

métrique [BLJ17] couplant une méthode intégrale de frontière pour le solveur fluide avec une formulation faible de l'équilibre mécanique (méthode type éléments finis) pour le solveur solide a été développée pour l'étude de la dynamique de gouttes, vésicules et capsules en écoulement de Stokes. C'est cette méthode qui a été utilisée dans cette thèse et qui est brièvement décrite dans ce chapitre.

## 2.1.2 Intégrales de frontière

### Fonctions de Green des équations de Stokes

Soit une force ponctuelle  $a\delta(\mathbf{x}_0)$  d'amplitude  $a$ , avec  $\delta(\mathbf{x}_0)$  la fonction de Dirac en trois dimensions centrée au point  $\mathbf{x}_0$  choisi arbitrairement. On peut écrire les équations de Stokes pour une sollicitation singulière en  $\mathbf{x}_0$  comme

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad - \nabla p + \eta \Delta \mathbf{v} + a\delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) = \mathbf{0} \quad (2.1)$$

[Poz92] propose une méthode de résolution pour déterminer la solution de l'équation 2.1 à l'aide d'une fonction de Green  $\mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0)$ , qui relie la sollicitation en  $\mathbf{x}_0$  (le point source) au champ de vitesse induit en  $\mathbf{x}$  (le point d'observation). On peut montrer qu'une autre formulation de l'équation de Stokes en fonction de la pression est

$$\Delta p = 0 \quad (2.2)$$

En utilisant les propriétés harmoniques de cette équation, on peut alors écrire

$$v_i(\mathbf{x}) = \frac{1}{8\pi\eta} G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) a_j \quad (2.3)$$

Dans cette équation, la fonction de Green  $\mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0)$  représente, à une constante près, le champ de vitesse en  $\mathbf{x}$  produit par une force ponctuelle en  $\mathbf{x}_0$ , tandis que la force  $a\delta(\mathbf{x}_0)$  représente les contraintes appliquées en un point donné  $\mathbf{x}_0$ . [Poz92] écrit également le tenseur des contraintes en  $\mathbf{x}$  comme étant le produit d'une fonction de Green  $\mathbf{T}$  et de la force imposée en  $\mathbf{x}_0$

$$\sigma_{ik}(\mathbf{x}) = \frac{1}{8\pi} T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) a_j \quad (2.4)$$

Les fonctions de Green  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{T}$  dépendent des conditions limites de l'écoulement. Dans un écoulement libre, elles s'expriment en coordonnées cartésiennes comme

$$G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) = \frac{\delta_{ij}}{\|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0\|} + \frac{(x_i - x_{0i})(x_j - x_{0j})}{\|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0\|^3} \quad (2.5)$$

$$T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) = -6 \frac{(x_i - x_{0i})(x_j - x_{0j})(x_k - x_{0k})}{\|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0\|^5} \quad (2.6)$$

avec  $\delta_{ij}$  le symbole de Kronecker.  $\mathbf{G}$  est également appelé Stokeslet.

Lorsque le domaine fluide considéré  $\Omega$  est limité par une paroi infinie, l'influence de celle-ci doit être considérée dans les fonctions de Green. On peut décomposer cette influence en différentes contributions [Bla71] données par des singularités ponctuelles additionnées au terme d'écoulement libre, grâce à la linéarité des équations de Stokes. La condition d'adhérence à la paroi se traduit par  $\mathbf{G}^W((x, y_w, z), \mathbf{x}_0) = 0$  si la paroi est localisée dans le plan  $y = y_w$ ,  $\mathbf{G}^W$  étant la fonction de Green associée à la présence d'une paroi (*Wall*). Dans ce cas, on obtient :

$$\mathbf{G}^W(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) = \mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) - \mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0^{im}) + 2h_0^2 \mathbf{G}^D(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0^{im}) - 2h_0 \mathbf{G}^{SD}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0^{im}) \quad (2.7)$$

où  $h_0 = y_0 - y - w$  est la distance entre le pôle et la paroi et  $\mathbf{x}_0^{im} = (x_0, 2y_w - y_0, z_0)$  le symétrique du pôle par rapport au plan de la paroi. Le terme  $\mathbf{G}^D$  correspond à un dipôle de forces et le terme  $\mathbf{G}^{SD}$  à un doublet de Stokeslet, ils sont définis par

$$G_{ij}^D(\mathbf{x}) = \pm \left( \frac{\delta_{ij}}{\|\mathbf{x}\|^3} - 3 \frac{x_i x_j}{\|\mathbf{x}\|^5} \right) \quad (2.8)$$

$$G_{ij}^{SD}(\mathbf{x}) = x_1 G_{ij}^D(\mathbf{x}) \pm \frac{\delta_{j1} x_i - \delta_{i1} x_j}{\|\mathbf{x}\|^3} \quad (2.9)$$

avec un signe négatif pour  $j = 1$  et un signe positif pour  $j = 0, 2$ , les indices 0,1 et 2 correspondant respectivement aux directions  $x$ ,  $y$  et  $z$ . La fonction  $\mathbf{T}$  subit également le même type de décomposition ; cependant, n'étant pas utilisée dans la suite du manuscrit, elle ne sera pas détaillée ici.

Nous détaillerons ici le principe du doublet en partant des écoulements potentiels pour plus de clarté. Il existe dans la décomposition de ces écoulements des sources et des puits ; le doublet est l'association de ces deux singularités, dans la limite où leur centre est le même tout en gardant le produit de l'intensité des sources avec la distance entre leurs centres constant.

### Formulation en intégrale de frontière

Les fonctions de Green permettent de relier une sollicitation en un point avec son influence en un autre point donné du domaine considéré  $\Omega$ . Dans la méthode numérique des intégrales de frontière, ce sont elles qui permettent de relier l'écoulement dans un domaine fluide à une distribution de vitesse et d'ef-

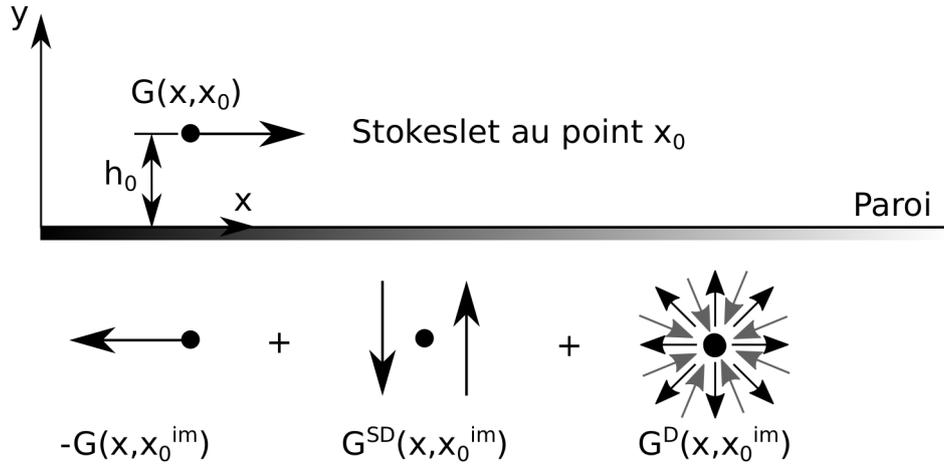


FIGURE 2.1 – Décomposition de la fonction de Green associée à la présence d'une paroi en singularités images, de gauche à droite : Stokeslet, un doublet de Stokeslet et un dipôle de forces [C B77].

forts sur la frontière de ce domaine.

L'une des façons de formuler les intégrales de frontière a été détaillée dans [Poz92] pour un domaine fluide délimité par une frontière  $S$ . L'auteur aboutit au résultat suivant :

$$u_j(\mathbf{x}_0) = -\frac{1}{8\pi\eta} \int_S f_i(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) dS(\mathbf{x}) + \frac{1}{8\pi} \int_S u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) \quad (2.10)$$

La normale  $\mathbf{n}$  est tournée vers l'extérieur de la surface  $S$ . Dans le cas d'une interface entre deux fluides,  $S$  sera l'interface et  $\mathbf{f}$  la force surfacique en  $\mathbf{x}$ . On utilise ici la linéarité des équations de Stokes, qui est détaillée dans la partie .

Une autre formulation est également proposée dans l'ouvrage, plus adaptée aux conditions limites à l'interface évoquées dans les chapitres suivants. En effet, pour étudier l'influence d'un écoulement sur la dynamique d'une interface, nous définissons le saut de contraintes surfaciques à l'interface entre les fluides intérieur (1) et extérieur (2), défini comme  $\Delta \mathbf{f} = \mathbf{f}^{(2)} - \mathbf{f}^{(1)} = (\sigma^{(2)} - \sigma^{(1)}) \cdot \mathbf{n}$ .

En introduisant le contraste de viscosité  $\lambda = \eta^{(2)}/\eta^{(1)}$ , il est finalement possible de déterminer la vitesse fluide à l'interface  $S$  au point  $\mathbf{x}_0$  par l'équation [Poz92]

$$u_j(\mathbf{x}_0) = u_j^\infty(\mathbf{x}_0) + \frac{1}{4\pi\eta^{(1)}(\lambda + 1)} \int_S \Delta f_i(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) dS(\mathbf{x}) + \frac{1 - \lambda}{4\pi(1 + \lambda)} \int_S^{PV} u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) \quad (2.11)$$

L'exposant  $PV$  indique que le second membre correspond à la valeur de l'intégrale impropre équivalente quand le point  $\mathbf{x}_0$  est sur l'interface  $S$ . La vitesse

$\mathbf{u}_j^\infty(\mathbf{x})$  correspond à la vitesse de l'écoulement externe au point  $\mathbf{x}$  en l'absence de perturbation.

Les travaux décrits dans ce manuscrit concernent uniquement le cas où les fluides internes et externes ont la même viscosité  $\eta$  (donc  $\lambda = 1$ ). La relation 2.11 devient alors

$$u_j(\mathbf{x}_0) = u_j^\infty(\mathbf{x}_0) + \frac{1}{8\pi\eta} \int_S \Delta f_i(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) dS(\mathbf{x}) \quad (2.12)$$

Les propriétés de l'interface influenceront sur l'expression du saut de contraintes  $\Delta \mathbf{f}$ , qui sera explicitée pour chacun des objets étudiés dans la section 2.3. On peut noter ici que la relation 2.12 permet de calculer le champ de vitesse en tout point de l'interface (et même, en modifiant les coefficients, en tout point du domaine) dès lors que le champ de forces interfaciales est connu. En pratique, cela nécessite de calculer numériquement l'intégrale 2.12, ce qui sera détaillé à la section 2.4.2. Avant cela, il faut expliciter comment d'une part l'interface est représentée numériquement (section 2.2.1) et ensuite comment passer de cette représentation à la détermination du champ de forces interfaciales (section 2.3), c'est-à-dire la connaissance de ces forces en chaque point de l'interface.

## 2.2 Discrétisation de l'interface fluide

### 2.2.1 Description de l'interface

Il est nécessaire de discrétiser l'interface pour pouvoir procéder à une résolution numérique du problème. Il existe différentes méthodes qui permettent une discrétisation et un suivi de la déformation d'une interface courbe en deux dimensions, comme par exemple des méthodes spectrales qui permettent un suivi de la déformation par rapport à la sphère pour les faibles déformations [ZSS11], ou encore la division de l'interface en différents domaines géométriques plus simples, comme par exemple des triangles plans [FBM14]. La difficulté est d'avoir une représentation cohérente de l'interface, qui permette à la fois de calculer le champ de vitesse une fois que le champ de forces interfaciales est connu, mais aussi qui permette de calculer ce champ de forces interfaciales. Or, même pour le cas "simple" d'une goutte, la force dépend de la courbure locale (donc d'une dérivée seconde de la position). Un calcul direct de la courbure nécessiterait donc a minima une représentation de l'interface qui soit  $C^2$ . Cette contrainte de régularité est encore plus forte pour le cas des vésicules, pour lesquelles la force interfaciale fait intervenir la dérivée seconde de la courbure : il faudrait alors utiliser une représentation au moins  $C^4$  de la surface. Différentes méthodes permettent d'obtenir une régularité suffisante, ou d'abaisser les conditions de régularité nécessaires en utilisant par exemple une formulation faible du calcul de force (permettant de passer de  $C^4$  à  $H^2$ ), ou en réécrivant les relations intégrales.

Nous choisissons ici une approche mixte qui d'une part diminue les conditions de régularité par l'emploi d'une formulation faible pour le problème d'équilibre mécanique de l'interface et d'autre part utilise des éléments dits "de subdivision" qui possèdent des propriétés de régularité ( $C^2$  presque partout) suffisantes pour que la formulation faible soit bien posée. Nous utiliserons ainsi les travaux de Charles Theorell Loop [Loo87] qui propose une méthode de représentation d'une interface à partir d'éléments triangulaires. Cette méthode a été d'abord développée dans le contexte de la communauté du "computer graphics", c'est-à-dire la représentation et l'animation sur ordinateur de formes complexes (par exemple les personnages d'un film d'animation). L'idée de départ est de représenter la forme à l'aide d'un maillage initial grossier, de créer à partir de ce maillage de nouveaux éléments plus fins et de nouveaux nœuds en divisant les éléments existants et de répéter ce processus jusqu'à ce que la discrétisation ne soit plus perceptible. Les règles de découpage et de création de nouveaux éléments à partir d'un maillage sont appelées "règles de subdivision". On peut par exemple décider que tous les nœuds du maillage conservent leurs positions et que les nouveaux nœuds sont créés aux milieux des arêtes. Alors, les subdivisions successives conserveront parfaitement la forme de départ, mais celle-ci présentera des arêtes pointues correspondant au maillage de départ. A contrario, on peut construire une règle où chaque ancien nœud est repositionné à l'aide de la moyenne pondérée de ces voisins. Dans ce cas, des zones initialement pointues sont lissées et au bout de quelques itérations, on ne perçoit plus qu'une forme lisse. Ainsi, les règles de subdivision, développées dans [Loo87] considèrent un nœud  $\mathbf{x}_0^0$  entouré de six nœuds voisins  $\mathbf{x}_i^0$  avec  $i$  de 1 à 6 (on dira que le nœud est de valence  $N = 6$ ). Les nouveaux nœuds générés par la subdivision sont supportés par les arêtes du maillage d'origine, et leurs coordonnées sont définies par

$$\mathbf{x}_i^1 = \frac{3\mathbf{x}_0^0 + \mathbf{x}_{i-1}^0 + 3\mathbf{x}_i^0 + \mathbf{x}_{i+1}^0}{8} \quad (2.13)$$

$i$  est alors à considérer modulo la valence  $N$  du nœud. Les nœuds du maillage avant subdivision ont leurs coordonnées actualisées par la relation [Loo87] :

$$\mathbf{x}_0^1 = (1 - Nw)\mathbf{x}_0^0 + w\mathbf{x}_1^0 + \dots + w\mathbf{x}_N^0 \quad (2.14)$$

$$w = \frac{1}{N} \left[ \frac{5}{8} - \left( \frac{3}{8} + \frac{1}{4} \cos \frac{2\pi}{N} \right)^2 \right] \quad (2.15)$$

Un des intérêts majeurs des travaux de Loop [Loo87] a premièrement été de démontrer mathématiquement que, dans la limite d'une infinité de subdivisions, ce processus convergeait vers une forme qui a des propriétés de régularité intéressantes ( $C^2$ ). Deuxièmement, ces travaux montrent également que cette forme limite peut localement être obtenue explicitement comme une surface paramé-

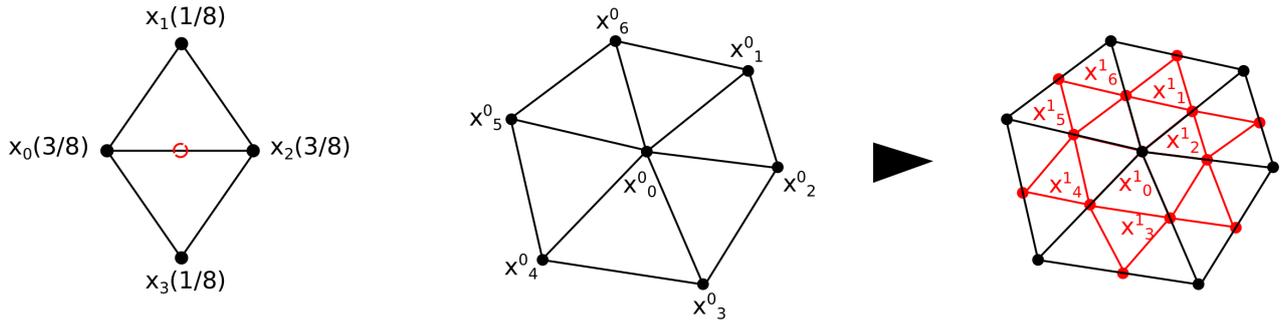


FIGURE 2.2 – Exemple de subdivision du maillage utilisé. **A gauche** : Création d'un nouveau noeud par subdivision. Les valeurs entre parenthèses sont les poids des coordonnées dans le calcul des coordonnées du nouveau noeud. **A droite** : Exemple de subdivision d'éléments, les notations correspondent au point  $x_0$  et ses 6 plus proches voisins à chaque étape. [COS00])

trée  $X(s^1, s^2)$  :

$$\mathbf{x}^{lim}(s^1, s^2) = \sum_{p \in \text{voisins}} N_p(s^1, s^2) \mathbf{x}^p \quad (2.16)$$

où  $(s^1, s^2)$  correspond au système de coordonnées locales d'un élément de la surface de départ,  $N_p$  sont des polynômes dépendants de  $(s^1, s^2)$  (appelés "fonctions de forme" en référence au vocabulaire des éléments finis) et  $\mathbf{x}^p$  sont les coordonnées des noeuds reliés à l'élément considéré par au plus une arête. Ainsi, connaissant le maillage initial, il est possible de calculer la position qu'occupe sur la surface limite n'importe quel point de la surface initiale. Mieux, cette position est continue et dérivable partout. La surface limite est donc au moins  $C^1$  et même  $C^2$  presque partout : la courbure n'est pas continue pour quelques points du maillage appelés irréguliers (points qui sont néanmoins indispensables pour mailler des formes sphériques).

La relation (2.16) peut être vue comme une représentation du champ  $\mathbf{x}$  sur le maillage initial, entièrement contrôlée par les degrés de liberté de position  $\mathbf{x}^p$ . L'idée de la méthode numérique que nous utilisons ici est d'étendre cette relation à chaque champ scalaire ou vectoriel défini sur l'interface. Notons que l'évolution d'un champ à l'intérieur d'un élément dépend des noeuds de l'élément et des noeuds  $p$  qui sont reliés à l'élément considéré par une arête en plus ( $p = 12$  dans le cas d'éléments triangulaires classiques).

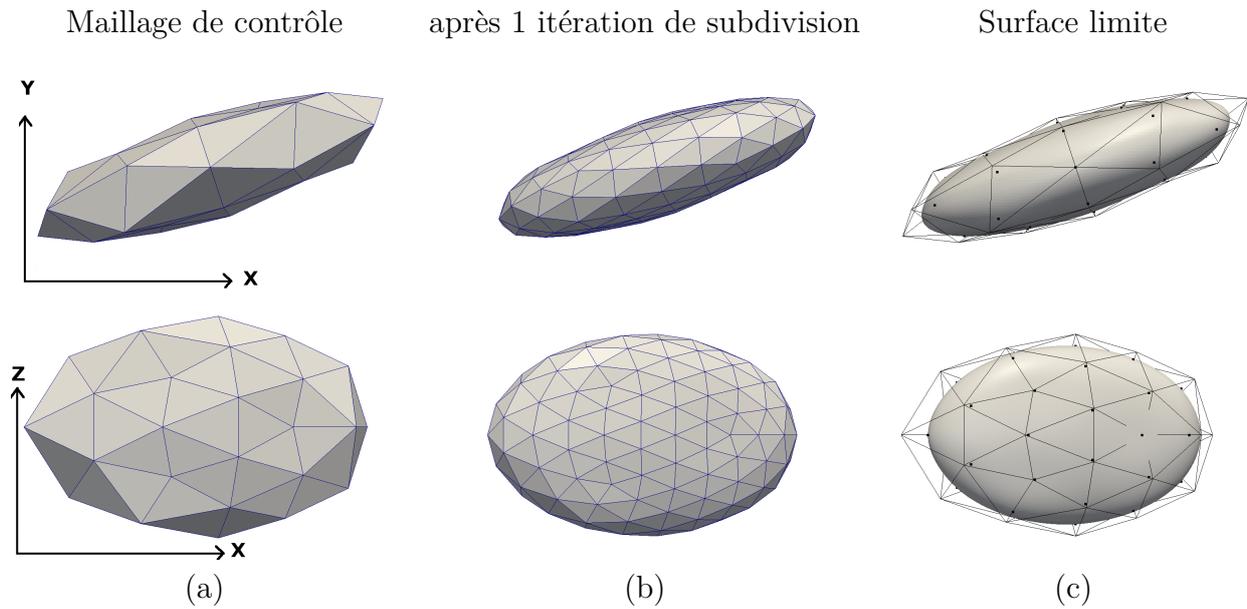


FIGURE 2.3 – Simulation d’une capsule dans un écoulement de cisaillement, montrant : (a) le maillage de contrôle qui définit les degrés de liberté de la simulation, composé ici de 80 éléments, (b) le maillage qui serait obtenu en appliquant une itération de subdivision de Loop, (c) la surface limite qui correspondrait à un nombre infini d’itérations de subdivision de Loop. Autour de cette surface limite est représenté le maillage de contrôle. En déplaçant les noeuds de ce maillage, on contrôle la forme de la surface limite.

## 2.3 Calcul des forces interfaciales

La densité surfacique de forces  $\mathbf{f}(\mathbf{x})$  appliquée aux fluides environnants, qui sera utilisée dans le calcul, est déterminée par la variation de l’énergie de surface

$$\mathbf{f} = \mathbf{f}(\mathbf{x}) = -\frac{1}{\sqrt{(g)}} \frac{\partial E}{\partial \mathbf{x}} \quad E = \int_S e_S dS \quad (2.17)$$

avec  $g$  le déterminant de la métrique en  $\mathbf{x}$ ,  $E$  l’énergie liée à la déformation de l’interface et  $e_S$  la densité surfacique d’énergie.

La description des énergies mises en jeu dans la dynamique interfaciale des gouttes complexes, présentée dans les parties 3.2.1 et 1.3, peut être classée en deux catégories, nécessitant chacune des outils numériques spécifiques :

- les modèles dépendant des propriétés géométriques de l’interface
- les modèles dépendant du champ de vitesse interfacial

On développera les différentes techniques numériques utilisées pour le calcul de

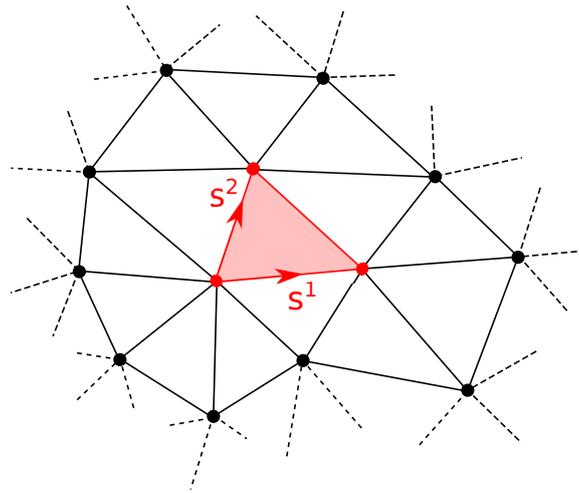


FIGURE 2.4 – Les coordonnées locales de chaque point localisé dans l'élément central (en rouge) sont exprimées en fonction du repère  $(s^1, s^2)$ . Les fonctions de forme dépendent des noeuds de l'élément, ainsi que des noeuds des éléments reliés à cet élément par une arête [BLJ17].

$f(\mathbf{x})$  dans la suite du chapitre. On détaillera tout d'abord les forces concernées, avant de présenter les outils qui permettent leur évaluation.

### 2.3.1 Forces interfaciales dépendant uniquement des propriétés géométriques

Dans cette partie, on discute des forces interfaciales dont la détermination nécessite de connaître uniquement la forme de l'interface. Les forces dont la détermination dépend aussi du champ de vitesse sont discutées dans la section 2.3.3.

#### Goutte : tension de surface constante

La dynamique interfaciale d'une goutte est principalement régie par la tension de surface  $\gamma$  qui sépare la phase discrète de la phase continue. La valeur de  $\gamma$  peut évoluer au cours du temps et selon sa position sur l'interface, en fonction des propriétés physico-chimiques des deux solutions. Par exemple, un gradient de température ou de surfactants peut affecter la distribution de tension de surface à l'interface, donnant lieu à des effets Marangoni.

Les études présentées dans ce manuscrit ignorent les cas de figure où de tels effets sont possibles. Dans ce cas, la tension de surface a une valeur constante  $\gamma$  dans le temps et le long de l'interface. Dans le cas d'une goutte, on a alors  $e_S = \gamma$

dans l'équation 2.17, soit

$$\mathbf{f}^\gamma(\mathbf{x}) = 2\gamma H \mathbf{n} \quad (2.18)$$

avec  $H = (c_1 + c_2)/2$  la courbure moyenne au point  $\mathbf{x}$  ( $c_1$  et  $c_2$  les courbures principales de la surface) et  $\mathbf{n}$  la normale à l'interface pointée vers l'extérieur au point  $\mathbf{x}$ . Cette force dépendant uniquement des caractéristiques géométriques de l'interface ainsi que d'un paramètre de simulation, la tension de surface, elle est résolue par une méthode des éléments finis, couplée avec les propriétés des éléments de Loop telles que décrites dans l'équation 2.16. La contribution de la tension de surface à la vitesse membranaire est alors

$$\mathbf{v}^\gamma(\mathbf{x}_0) = \int_S \mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) \mathbf{f}^\gamma(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) \quad (2.19)$$

### Vésicule/Polymersome : énergie de flexion

Le modèle utilisé pour décrire l'énergie associée à la flexion de la surface est celui de Canham-Helfrich [Can70], qui prend en compte les différentes propriétés géométriques de l'interface considérée :

$$E_b = \frac{\kappa}{2} \int_S (2H - c_0)^2 dS + \kappa_G \int_S K dS \quad (2.20)$$

avec  $\kappa$  le module de flexion,  $H$  la courbure moyenne,  $c_0$  la courbure spontanée, négligée dans la suite du manuscrit,  $\kappa_G$  le module de courbure gaussienne et  $K = c_1 c_2$  la courbure gaussienne.

La deuxième intégrale dans l'équation 2.20, dans le cas où la surface ne change pas de topologie (aucune apparition de trou), se réduit à une constante qui ne change pas au cours de la simulation d'après le théorème de Gauss-Bonnet. La force surfacique étant calculée comme la variation de l'énergie 2.20, on négligera ce terme pour ne garder que celui dépendant de la courbure moyenne de la surface. La densité surfacique de forces liées à la flexion s'écrit alors, par l'intermédiaire de l'équation 2.17

$$\mathbf{f}^\kappa(\mathbf{x}) = -\kappa(2\Delta_S H + 2H(H^2 - K))\mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad (2.21)$$

avec  $\mathbf{n}(\mathbf{x})$  la normale au point  $\mathbf{x}$  tournée vers le fluide externe et  $\Delta_S H$  l'opérateur laplacien surfacique de la courbure moyenne. Le signe négatif est issu de la convention de signe utilisée, qui considère négative la courbure moyenne  $H$  d'une sphère.

De la même manière que la tension de surface, ce modèle ne prend en compte que des caractéristiques géométriques de la surface ainsi qu'un paramètre de simulation, le module de flexion. Les forces de flexion sont donc calculées par

une méthode des éléments finis, associée à l'équation 2.16 pour la détermination des propriétés géométriques. La vitesse associée aux forces de flexion est alors déterminée par

$$\mathbf{v}^\kappa(\mathbf{x}_0) = \int_S \mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) \mathbf{f}^\kappa(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) \quad (2.22)$$

### 2.3.2 Calcul des forces dépendant uniquement des propriétés géométriques

Les expressions (2.18) et (2.21) des forces donnent une expression locale, qui relie en chaque point la valeur de la force à des propriétés géométriques de l'interface. Connaissant la forme de celle-ci, on pourrait donc en principe en déduire la valeur de  $\Delta f$  qui apparaît dans l'équation intégrale 2.12. Néanmoins, on note que la force de tension fait apparaître la courbure moyenne (donc la dérivée seconde de la position par rapport à une paramétrisation de la surface) et que la force de flexion fait apparaître le laplacien surfacique de la courbure (donc une dérivée quatrième de la position). Le calcul direct et local de ces deux forces nécessiterait donc d'avoir une représentation suffisamment régulière de l'interface. Or, les éléments de Loop sont seulement  $C^2$  sur les arrêtes et les sommets réguliers du maillage et  $C^1$  sur les points irréguliers du maillage. Notons qu'à l'intérieur d'un élément, la description est plus régulière ( $C^4$ ). Le calcul direct de la courbure serait donc possible presque partout (sauf aux noeuds irréguliers où elle n'est pas définie) et donnerait un champ de forces continu. En principe, le calcul de la force de flexion est possible également à l'intérieur des éléments, mais donnerait une force discontinue entre les éléments. Il est possible d'éviter ces difficultés en utilisant une méthode par éléments finis pour discrétiser l'équation 2.17. Dans ce cas, les contraintes sur la régularité de la représentation de l'interface sont diminuées et on peut alors calculer les forces de flexion et celles de tension dans le même cadre. En effet, l'équation (2.17) se réécrit alors [BLJ17] :

$$\delta \left( \int_S e_S dS \right) = \int_S \left[ \frac{1}{2} \sigma^{\alpha\beta} \delta a_{\alpha\beta} + \mu^{\alpha\beta} \delta b_{\alpha\beta} \right] dS = - \int_S (\mathbf{f}(\mathbf{x}) \cdot \delta \mathbf{x}) dS \quad (2.23)$$

où  $\delta \mathbf{x}$  peut s'interpréter comme une fonction test et où  $a_{\alpha\beta}$  et  $b_{\alpha\beta}$  correspondent aux tenseurs métriques et de courbure respectivement. Les coefficients  $\sigma^{\alpha\beta}$  et  $\mu^{\alpha\beta}$  sont liés à l'énergie surfacique considérée. Dans le cas d'une goutte avec tension de surface (constante ou non), on a simplement :

$$\sigma^{\alpha\beta} = \gamma a^{\alpha\beta} \quad , \quad \mu^{\alpha\beta} = 0 \quad (2.24)$$

Pour une vésicule, on a :

$$\sigma^{\alpha\beta} = \frac{\kappa}{2} [4H^2 a^{\alpha\beta} - 8Hb^{\alpha\beta}] \quad , \quad \mu^{\alpha\beta} = \frac{\kappa}{2} [4Ha^{\alpha\beta}] \quad (2.25)$$

On voit donc que, dans notre cas, il est nécessaire de pouvoir évaluer la courbure moyenne  $H$ , mais aussi les tenseurs métrique et de courbure. Nous utiliserons des éléments de géométrie différentielle sur l'élément considéré pour cela.

Soit un élément de surface dans un espace en trois dimension ; chaque point de cette surface peut être repéré à l'aide de ses coordonnées cartésiennes  $\mathbf{r}(x^1, x^2, x^3)$ . On définit un repère local à cet élément  $(\xi^1, \xi^2)$ . La distance entre deux points sur la surface est alors définie par

$$d\mathbf{r}^2(\xi^1, \xi^2) = g_{\alpha\beta} d\xi^\alpha d\xi^\beta \quad (2.26)$$

$$g_{\alpha\beta} = \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial \xi^\alpha} \cdot \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial \xi^\beta} \quad \alpha, \beta = 1, 2 \quad (2.27)$$

$g_{\alpha\beta}$  est le tenseur métrique, qui convertit des distances mesurées dans le repère propre à la surface en distances mesurées dans le repère cartésien en trois dimensions.

Ce repère local permet de définir des vecteurs tangents  $(\mathbf{t}_1(\mathbf{r}), \mathbf{t}_2(\mathbf{r}))$  et normaux  $\mathbf{n}(\mathbf{r})$  en chaque point de la surface

$$\mathbf{t}_\alpha(\mathbf{r}) = \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial \xi^\alpha} \quad \alpha = 1, 2 \quad (2.28)$$

$$\mathbf{n}(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{t}_1(\mathbf{r}) \times \mathbf{t}_2(\mathbf{r})}{|\mathbf{t}_1(\mathbf{r}) \times \mathbf{t}_2(\mathbf{r})|} \quad (2.29)$$

En construisant un parallélogramme infinitésimal autour du point  $\mathbf{r}$  à l'aide des vecteurs construits ci-dessus, on peut alors définir l'aire autour du point comme

$$dS(\mathbf{r}) = \mathbf{n}(\mathbf{r}) \cdot [\mathbf{t}_1(\mathbf{r})d\xi^1 \times \mathbf{t}_2(\mathbf{r})d\xi^2] = \sqrt{g}d\xi^1 d\xi^2 \quad (2.30)$$

$$g = g_{11}g_{22} - g_{12}g_{21} \quad (2.31)$$

Nous rappelons ici que  $g$  est le déterminant du tenseur métrique  $\mathbf{g}$ .

Pour calculer les courbures principales de la surface, on doit déterminer le tenseur de courbure  $\mathbf{b}$ . En considérant celui-ci comme la composante tangentielle du taux de variation de la normale à la surface, on a alors

$$b_{\alpha\beta} = \mathbf{n} \cdot \frac{\partial \mathbf{t}_\beta}{\partial \xi^\alpha} \quad (2.32)$$

[Pow10] montre alors que les courbures moyennes  $H$  et de Gauss  $K$  peuvent

être déterminées par l'intermédiaire des invariants de la matrice  $b_\beta^\alpha$ , définie par

$$b_\beta^\alpha = g^{\alpha\gamma} b_{\gamma\beta} \quad g^{\alpha\gamma} g_{\gamma\beta} = \delta_\beta^\alpha \quad (2.33)$$

$$(2.34)$$

avec le symbole de Kronecker,  $\delta_\beta^\alpha = 1$  pour  $\alpha = \beta$ , 0 sinon.  $H$  et  $K$  sont données par :

$$H = \frac{1}{2} Tr(b_\beta^\alpha) = \frac{1}{2} (b_1^1 + b_2^2) \quad K = det(b_\beta^\alpha) \quad (2.35)$$

Le calcul en tout point de ces valeurs nécessite de dériver deux fois sur la surface de référence, ce qui nécessite une description de ces surfaces par une représentation de régularité  $C^2$ . Comme ces quantités sont calculées aux points de Gauss utilisés pour discrétiser les intégrales apparaissant dans (2.23), cette condition de régularité est toujours satisfaite. On peut ainsi simplement insérer l'approximation de la position (2.16) dans par exemple le calcul du vecteur tangent :

$$\mathbf{t}_\alpha(\mathbf{r}) = \sum_{p \in \text{voisins}} \frac{\partial N_p(s^1, s^2)}{\partial s^\alpha} \mathbf{x}^p \quad (2.36)$$

Enfin, la fonction test  $\delta x$  et le champ de force  $\mathbf{f}$  sont approximés par les mêmes fonctions de forme que les autres champs. Une fois qu'on insère tous ces éléments dans l'équation (2.23), on voit que celle-ci peut s'écrire sous la forme simple suivante :

$$\langle \delta x \rangle M \{f\} = \langle \delta x \rangle \{rhs\} \quad (2.37)$$

où  $\{f\}$  désigne un vecteur colonne contenant l'ensemble des degrés de liberté décrivant le champ  $\mathbf{f}$ ,  $\langle \delta x \rangle$  un vecteur ligne contenant l'ensemble des degrés de liberté décrivant la fonction test  $\delta x$  et  $M$  et  $\{rhs\}$  respectivement une matrice et un vecteur colonne provenant de l'intégration de l'équation (2.23). Puisque l'équation (2.37) doit être vérifiée pour tout vecteur  $\langle \delta x \rangle$ , alors on doit avoir :

$$M \{f\} = \{rhs\} \quad (2.38)$$

qui est le système linéaire résolu pour obtenir le champ de force.

### 2.3.3 Forces interfaciales dépendant du champ de vitesse local

#### Vesicule et polymersome : Incompressibilité locale de surface

La membrane d'un liposome (ou d'un polymersome) est soumise à une contrainte s'ajoutant à la résistance à la flexion, la conservation locale de sa surface. En effet, comme développé dans la partie 1.3, les forces hydrodynamiques considérées dans les études réalisées font faire varier de manière très faible la surface membranaire. On peut donc considérer la membrane comme incompressible localement, ce qui se traduit par la condition

$$\nabla_s \cdot \mathbf{v}^m = 0 \quad (2.39)$$

Cette contrainte est traduite par un multiplicateur de Lagrange local, qu'on notera  $\gamma$  et qui a la dimension d'une tension de surface. Ce multiplicateur de Lagrange local est l'équivalent surfacique de la pression volumique dans le cas d'un fluide incompressible : il n'est pas déterminé par une loi de comportement, mais s'adapte de façon à ce que le champ de vitesse satisfasse la contrainte. Par conséquent, pour une vésicule, cela se traduit par une "tension de surface" variable, dépendant des conditions d'écoulement. La force interfaciale associée est alors la généralisation de l'équation 2.18 :

$$\mathbf{f}^\gamma(\mathbf{x}) = \nabla_s \gamma + 2\gamma H \mathbf{n} \quad (2.40)$$

et la contribution de la tension de surface à la vitesse membranaire s'écrit toujours sous la forme (2.19), que l'on rappelle ici :

$$\mathbf{v}^\gamma(\mathbf{x}_0) = \int_S \mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) \mathbf{f}^\gamma(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) \quad (2.41)$$

L'équation 2.39 doit être vérifiée pour tout point  $\mathbf{x}$  sur la membrane. La vitesse  $\mathbf{v}^m$  est ici composée des contributions de l'écoulement extérieur, de l'énergie de flexion et d'une vitesse  $\mathbf{v}^\gamma$  qui dépend de  $\gamma$ , multiplicateur de Lagrange qui vérifie la contrainte d'incompressibilité surfacique 2.39. On utilise la méthode GMRES [SS86] pour résoudre le système, la résolution étant détaillée à la suite de ce chapitre.

#### Gouttes et polymersomes : viscosité interfaciale

Lors de la simulation de gouttes avec viscosité interfaciale ou de polymersomes, il est nécessaire de prendre en compte les viscosités de cisaillement et de dilatation en compte dans la dynamique d'interface. Par analogie avec le tenseur des contraintes visqueuses pour un fluide newtonien en trois dimensions,

on peut définir un tenseur des contraintes visqueuses surfacique comme [Scr60]

$$\sigma_s = (\mu_d - \mu_s)\Theta\mathbf{P} + 2\mu_s\mathbf{e} \quad (2.42)$$

$\mathbf{P} = \mathbf{I} - \mathbf{n}\mathbf{n}^T$  est le projecteur sur la surface interfaciale,  $\Theta = \mathbf{P} : \nabla_s \mathbf{v}$  le tenseur des taux de dilatation surfacique et  $\mathbf{e}$  le tenseur des taux de déformation surfacique.  $\mathbf{I}$  est le tenseur identité,  $\mathbf{n}$  la normale à la surface pointant vers l'extérieur et on définit  $\mathbf{e}$  par

$$\mathbf{e} = \frac{1}{2}\mathbf{P} \left( \nabla_s \mathbf{v} + (\nabla_s \mathbf{v})^T \right) \mathbf{P} \quad (2.43)$$

Par l'intermédiaire des tenseurs  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{e}$ , les forces visqueuses dépendent de la vitesse locale de l'interface. Il est donc nécessaire d'utiliser une méthode itérative pour déterminer les forces de viscosité, qui sont alors définies par  $\mathbf{f}^{visc} = \nabla_s \cdot \sigma_s$ . Le détail du système itératif et de sa résolution sera décrit ci-dessous.

La contribution de la vitesse due aux forces de viscosité est alors reliée aux autres contributions par la relation

$$\mathbf{v}^m(\mathbf{x}_0) - \mathbf{v}^{visc}(\mathbf{x}_0, \mathbf{v}^m(\mathbf{x}_0)) = \mathbf{v}^\infty(\mathbf{x}_0) + \mathbf{v}^\gamma(\mathbf{x}_0) \quad (+\mathbf{v}^\kappa(\mathbf{x}_0)) \quad (2.44)$$

$$\mathbf{v}^{visc}(\mathbf{x}_0, \mathbf{v}^m(\mathbf{x}_0)) = \int_S \mathbf{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) \mathbf{f}^{visc}(\mathbf{x}, \mathbf{v}^m(\mathbf{x})) dS(\mathbf{x}) \quad (2.45)$$

### 2.3.4 Outils numériques pour la résolution des systèmes linéaires

Les systèmes considérés dans la partie 2.3.3 (incompressibilité locale de surface et forces de viscosité) sont des systèmes linéaires qui dépendent de la vitesse locale de l'interface au point d'évaluation. Dans le cas de l'incompressibilité de surface, la valeur de  $\gamma$  dépend de la position du point considéré; dans le cas de la viscosité interfaciale, le tenseur des contraintes visqueuses dépend de la vitesse de l'interface au temps considéré. Or, ces quantités interviennent dans le calcul de la vitesse en chaque point. Il est donc nécessaire d'utiliser une méthode itérative pour déterminer la contribution de ces phénomènes à la vitesse de la surface pour chaque itération. Dans la suite de cette partie, nous détaillerons les systèmes résolus par la méthode itérative dans le cadre du calcul des vitesses.

Dans le cas de l'incompressibilité surfacique, il est nécessaire de déterminer la valeur de  $\gamma$  comme multiplicateur de Lagrange. On résout le système 2.39, qu'on ré-écrit

$$\nabla_s \cdot \mathbf{v}^\gamma(\mathbf{x}) = -(\nabla_s \cdot \mathbf{v}^\infty(\mathbf{x}) + \nabla_s \cdot \mathbf{v}^\kappa(\mathbf{x})) \quad (2.46)$$

$$\mathbf{D}^\gamma \gamma(\mathbf{x}) = -(\nabla_s \cdot \mathbf{v}^\infty(\mathbf{x}) + \nabla_s \cdot \mathbf{v}^\kappa(\mathbf{x})) \quad (2.47)$$

avec  $\mathbf{v}^\kappa$  la contribution de la force de flexion à la vitesse au point  $\mathbf{x}$ . L'équation

2.47 résolue pour déterminer le multiplicateur de Lagrange associée à l'incompressibilité locale de surface peut se réécrire sous forme matricielle

$$\mathbf{DGF}^\gamma \boldsymbol{\Gamma} = -(\mathbf{DV}^\infty + \mathbf{DGF}^b) \quad (2.48)$$

$\mathbf{D}$  correspond à l'opérateur divergence surfacique sous sa forme matricielle,  $\mathbf{G}$  aux fonctions de Green associées à l'écoulement externe.  $\mathbf{F}^\gamma$  à l'opérateur qui convertit le multiplicateur de Lagrange lié à l'incompressibilité locale de surface et stocké dans la matrice  $\boldsymbol{\Gamma}$  en forces surfaciques,  $\mathbf{V}^\infty$  est la contribution de l'écoulement externe à la vitesse interfaciale et  $\mathbf{F}^b$  aux forces dues à la résistance à la flexion de la membrane.

Dans le cas des forces de viscosité, le système à résoudre est de la forme

$$(\mathbf{I} - \mathbf{GF}^{visc}) \mathbf{V}^m = \mathbf{V}^\infty + \mathbf{GF}^b + \mathbf{GF}^\gamma \quad (2.49)$$

afin de déterminer l'opérateur  $\mathbf{F}^{visc}$  qui transforme la vitesse membranaire en chaque point en forces de viscosité correspondantes, avec  $\mathbf{V}^m$  la vitesse interfaciale sans viscosité d'interface.

La résolution de ces systèmes se fait grâce à la méthode GMRES développée par [SS86].

Ces systèmes matriciels sont cependant mal conditionnés : le nombre d'itérations nécessaires pour atteindre la précision demandée augmente lorsque le maillage diminue, augmentant le temps de calcul nécessaire. Pour palier à ce défaut, il est possible de préconditionner le système, c'est à dire déterminer une matrice qui facilite la résolution et la stabilité de la méthode numérique telle que, pour  $\mathbf{P}$  la matrice préconditionneur,

$$\mathbf{DGF}^\gamma \mathbf{P}^{-1} \mathbf{y} = -(\mathbf{DV}^\infty + \mathbf{DGF}^b) \quad \mathbf{P} \boldsymbol{\Gamma} = \mathbf{y} \quad (2.50)$$

Dans ce cas précis, le préconditionneur  $\mathbf{P} = \widehat{\mathbf{D}} \widehat{\mathbf{G}} \widehat{\mathbf{F}}^\gamma$  est calculé comme l'estimation des forces de tension, de la vitesse et de la divergence surfacique de la vitesse sur un maillage triangulaire plan. Ce maillage est construit en projetant le maillage de contrôle sur la surface limite et en utilisant les outils développés dans [BLJ11] pour calculer entre autres les courbures, les gradients et laplaciens surfaciques sur un maillage  $C^0$ . L'amélioration des performances que celui-ci occasionne avec la méthode GMRES est analysée dans [BLJ17].

De la même manière que pour l'équation 2.50, on introduit un préconditionneur  $\mathbf{P}^{visc} = \widehat{\mathbf{G}} \widehat{\mathbf{F}}^{visc}$  tel que le système à résoudre devient

$$\mathbf{V}^m - \mathbf{GF}^{visc} (\mathbf{P}^{visc})^{-1} \mathbf{y} = \mathbf{V}^\infty + \mathbf{GF}^b + \mathbf{GF}^\gamma \quad \mathbf{P}^{visc} \mathbf{V}^m = \mathbf{y} \quad (2.51)$$

Ici,  $\widehat{\mathbf{F}}^{visc}$  correspond à l'estimation des forces interfaciales de viscosité avant réso-

lution du système, en prenant pour hypothèse une variation limitée de ces forces entre chaque pas de temps.  $\widehat{\mathbf{G}}$  est l'estimation des fonctions de Green pour la vitesse.

L'utilisation de ce nouveau préconditionnement change significativement le nombre d'itérations nécessaire pour converger vers la solution du système. Pour étudier l'influence du préconditionneur pour la viscosité interfaciale, le cas d'une goutte sous écoulement extensionnel plan a été étudié, avec comme paramètres principaux :

- Raffinement d'ordre 2 (320 noeuds)
- Nombre capillaire  $Ca = \frac{\dot{\gamma} R_0 \mu}{\sigma} = 1$
- Résidu minimum pour la méthode GMRES :  $10^{-7}$
- Viscosités interfaciales (i.e.  $Bq_s$  et  $Bq_d$ ) variables, avec  $Bq_s = \frac{\mu_s}{R_0 \mu}$  et  $Bq_d$  défini de manière identique

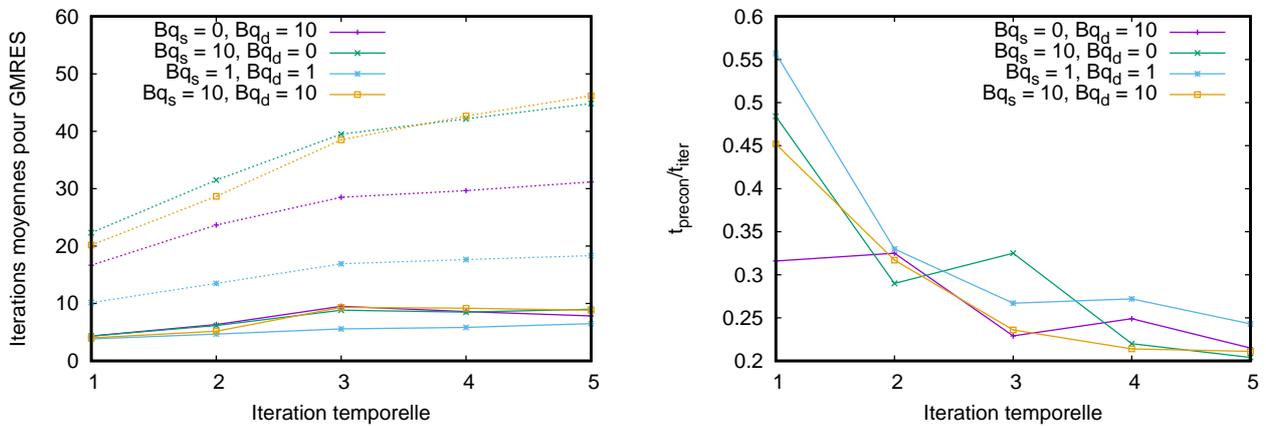


FIGURE 2.5 – **A gauche** : nombre d'itérations moyennes pour atteindre le maximum de résidu imposé pour la méthode GMRES. Les courbes pleines sont avec préconditionneur, les courbes pointillées sans. **A droite** : Proportion du temps de calcul du préconditionneur par rapport au temps total d'une itération temporelle.

Avec le préconditionneur, entre 5 et 10 itérations sont nécessaires pour les cas considérés, soit une réduction drastique par rapport au nombre d'itérations nécessaires auparavant. La construction du préconditionneur dans sa version actuelle est telle que la résolution itérative commence avec une initialisation très proche de la solution, au détriment du temps de calcul. En effet, la moitié du temps de calcul dédié à la première itération temporelle est utilisé pour calculer la matrice de préconditionnement et sa factorisation LU et ce temps se stabilise entre 20% et 30% tout au long de la simulation.

La taille de la matrice étant relative au nombre de noeuds du maillage, ce temps est fortement corrélé au raffinement. Il est donc en l'état peu utile d'utiliser cet outil pour des maillages très fins, mais permet une accélération notable des cal-

culs dans les cas des gouttes avec viscosité interfaciale et des polymersomes dans une première approche.

## 2.4 Schémas numériques

### 2.4.1 Schémas temporels

Il existe deux principaux types de méthodes numériques dédiées à l'intégration temporelle d'équations de la forme

$$\frac{\partial \mathbf{f}}{\partial t} = \alpha \frac{\partial^2 \mathbf{f}}{\partial \mathbf{x}^2} + \beta \frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \mathbf{x}} + \gamma \mathbf{f} \quad (2.52)$$

Cette fonction est définie sur une grille de points de coordonnées  $\mathbf{x}^n$  séparés par un intervalle  $\Delta \mathbf{x}$  et on discrétise le temps en valeurs discrètes  $t^n$  séparées par un pas de temps  $\Delta t$ .

Les méthodes explicites calculent la valeur de  $\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{f}(\mathbf{x}, t + \Delta t)$  en fonction de la valeur de la fonction  $\mathbf{f}$  en  $(\mathbf{x} - n\Delta \mathbf{x}, t)$ ,  $(\mathbf{x}, t)$  et  $(\mathbf{x} + n\Delta \mathbf{x}, t)$ . Ces méthodes sont rapides mais possèdent des conditions de stabilité qui peuvent devenir contraignantes en fonction du pas de temps souhaité. Un exemple de méthode explicite est la méthode d'Euler-Cauchy ou encore les méthodes Runge-Kutta, qui seront explicitées dans la suite du manuscrit.

Les méthodes implicites calculent la valeur de  $\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{f}(\mathbf{x}, t + \frac{\Delta t}{2})$  en fonction des valeurs de la fonction  $\mathbf{f}$  en  $(\mathbf{x} - n\Delta \mathbf{x}, t)$ ,  $(\mathbf{x}, t)$  et  $(\mathbf{x} + n\Delta \mathbf{x}, t)$ , comme pour les méthodes explicites, mais également en fonction de  $(\mathbf{x} - n\Delta \mathbf{x}, t + \Delta t)$ ,  $(\mathbf{x}, t + \Delta t)$  et  $(\mathbf{x} + n\Delta \mathbf{x}, t + \Delta t)$ . Ces méthodes impliquent la résolution de systèmes matriciels, elles sont donc lentes ; cependant, elles sont également robustes et stables. On peut par exemple citer la méthode trapézoïdale, ou encore la méthode de Crank-Nicholson.

Lors de l'étude de la dynamique interfaciale d'une goutte, on utilise la méthode Runge-Kutta-Fehlberg [Feh69] afin de déterminer la vitesse fluide à l'interface et donc la déformation de cette interface. Les méthodes Runge-Kutta sont une série de méthodes numériques qui permettent l'intégration de systèmes de la forme

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{y}(t)}{\partial t} &= \mathbf{f}(\mathbf{x}, t) & t \in [0; 1] \\ \mathbf{y}(0) &= \mathbf{y}_0 \end{aligned} \quad (2.53)$$

On discrétise le temps en  $n$  valeurs  $t_n$  séparées de  $\Delta t$  pour procéder à l'intégration numérique. Chaque intervalle est ensuite divisé en  $q$  points, tels que  $t_{n,q} \in [t_n; t_{n+1}]$  et  $t_{n,i} = t_n + c_i h$  avec  $c_i \in [0; 1]$  et  $1 < i < q$ . On peut alors établir

les relations intégrales suivantes :

$$\mathbf{y}(t_{n,i}) = \mathbf{y}(t_n) + \int_{t_n}^{t_{n,i}} \mathbf{f}(\mathbf{x}, u) du \quad (2.54)$$

$$= \mathbf{y}(t_n) + h \int_0^{c_i} \mathbf{f}(\mathbf{x}, t_n + \tau h) d\tau \quad (2.55)$$

$$\mathbf{y}(t_{n+1}) = \mathbf{y}(t_n) + h \int_0^1 \mathbf{f}(\mathbf{x}, t_n + \tau h) d\tau \quad (2.56)$$

Ces intégrales sont approximées numériquement par  $i+1$  méthodes d'intégration choisies au préalable, ce qui revient à fixer  $q(q+1)$  paramètres  $a_{ij}$  et  $b_i$  (avec  $1 < j < q$ ) tels que

$$\int_0^{c_i} f(\mathbf{x}, t_n + \tau h) \rightarrow \sum_{j=1}^q a_{ij} \mathbf{f}(\mathbf{x}, t_n + c_j h) \quad (2.57)$$

$$\int_0^1 f(\mathbf{x}, t_n + \tau h) \rightarrow \sum_{i=1}^q b_i \mathbf{f}(\mathbf{x}, t_n + c_i h) \quad (2.58)$$

En résumé, les méthodes Runge-Kutta peuvent s'écrire de manière générale sous la forme

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{y}_0 \text{ donné} \\ \mathbf{y}_{n_i} = \mathbf{y}_n + h \sum_{j=1}^q a_{ij} \mathbf{f}(\mathbf{x}, t_{n,j}) \\ \mathbf{y}_{n+1} = \mathbf{y}_n + h \sum_{i=1}^q b_i \mathbf{f}(\mathbf{x}, t_{n,i}) \end{array} \right. \quad (2.59)$$

Dans le cas de la méthode Runge-Kutta-Fehlberg, ou Runge-Kutta 45, on compare les résultats de deux méthodes d'intégration différentes, l'une d'ordre 4 et l'autre d'ordre 5 :

$$\mathbf{y}_{n+1}^{(4)} = \mathbf{y}_n + \frac{25}{216} k_1 + \frac{1408}{2565} k_3 + \frac{2197}{4101} k_4 - \frac{1}{5} k_5 \quad (2.60)$$

$$(2.61)$$

$$\mathbf{y}_{n+1}^{(5)} = \mathbf{y}_n + \frac{16}{135} k_1 + \frac{6656}{12.825} k_3 + \frac{28.561}{56.430} k_4 - \frac{9}{50} k_5 + \frac{2}{55} k_6 \quad (2.62)$$

avec les valeurs intermédiaires

$$k_1 = h\mathbf{f}(\mathbf{x}, t_n, 3\mathbf{y}_n) \quad (2.63)$$

$$k_2 = h\mathbf{f}\left(\mathbf{x}, t_n + \frac{1}{4}h, \mathbf{y}_n + \frac{1}{4}k_1\right) \quad (2.64)$$

$$k_3 = h\mathbf{f}\left(\mathbf{x}, t_n + \frac{3}{8}h, \mathbf{y}_n + \frac{3}{32}k_1 + \frac{9}{32}k_2\right) \quad (2.65)$$

$$k_4 = h\mathbf{f}\left(\mathbf{x}, t_n + \frac{12}{13}h, \mathbf{y}_n + \frac{1932}{2197}k_1 - \frac{7200}{2197}k_2 + \frac{7296}{2197}k_3\right) \quad (2.66)$$

$$k_5 = h\mathbf{f}\left(\mathbf{x}, t_n + h, \mathbf{y}_n + \frac{439}{216}k_1 - 8k_2 + \frac{3680}{513}k_3 - \frac{845}{4104}k_4\right) \quad (2.67)$$

$$k_6 = h\mathbf{f}\left(\mathbf{x}, t_n + \frac{1}{2}h, \mathbf{y}_n - \frac{8}{27}k_1 + 2k_2 - \frac{3544}{2565}k_3 + \frac{1859}{4104}k_4 - \frac{11}{40}k_5\right) \quad (2.68)$$

$$(2.69)$$

Bien que le résultat de la méthode d'ordre 5 soit par définition plus précise, le calcul des deux approximations permet l'adaptation du pas de temps  $h$ . En effet, la valeur de  $h$  est actualisée à chaque itération pour assurer la précision et la stabilité de la méthode globale :

$$h_{n+1} = \frac{\text{tol}(h)}{2 | y_{n+1}^{(5)} - y_{n+1}^{(4)} |} h_n \quad (2.70)$$

Cette condition permet d'assurer que les deux approximations sont identiques à une tolérance  $\text{tol}(h)$  tout en optimisant l'intégration. Si la tolérance n'est pas respectée, la valeur de  $h$  est diminuée ; si la solution est plus précise que nécessaire,  $h$  augmente. La condition supplémentaire dans notre cas est le respect de l'incompressibilité de surface, qui doit être assurée à chaque étape intermédiaire  $k_q$ .

Dans le cas des vésicules et des polymersomes, le pas de temps utilisé doit être inférieur à un temps caractéristique de flexion, basé sur la taille caractéristique d'une maille. Cette contrainte est trop restrictive pour utiliser en pratique ce genre de schéma dans les conditions usuelles de simulation. La solution envisagée pour déterminer la vitesse fluide est donc l'utilisation d'une méthode implicite, plus robuste, du type de la méthode d'Euler implicite du second ordre, ou méthode trapézoïdale

$$\mathbf{y}(t_{n+1}) = \mathbf{y}(t_n) + \frac{\Delta t}{2} [\mathbf{f}(\mathbf{x}_n, t_n) + \mathbf{f}(\mathbf{x}_{n+1}, t_{n+1})] \quad (2.71)$$

avec toujours la condition d'incompressibilité locale de surface à respecter. Cette équation est résolue de manière itérative, tant que le résidu associé à l'itération

$r$  est supérieur à une tolérance donnée, avec

$$res_x = \mathbf{x}_{n+1}^{(r)} - [\mathbf{x}_n + \frac{\Delta t}{2}(\mathbf{f}(\mathbf{x}_n, t_n) + \mathbf{f}(\mathbf{x}_{n+1}^{(r)}, t_{n+1}^{(r)}))] \quad (2.72)$$

et  $f(\mathbf{x}, t)$  vérifiant toujours la condition  $\nabla_s \cdot \mathbf{f}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{0}$  à travers le multiplicateur de Lagrange  $\gamma$ .

## 2.4.2 Intégration spatiale

L'interface est décrite comme une surface courbe dans un espace en trois dimensions, par l'intermédiaire des éléments de Loop décrits dans la partie 2.2.1. Lors des différents calculs numériques, il est nécessaire d'intégrer les champs définis sur le maillage. Pour cela, on approche la valeur de l'intégrale spatiale sur un élément à l'aide d'une méthode de quadrature de Gauss à douze points, basée sur un élément triangulaire rectangle et plan. L'intégration sur la surface de l'élément devient alors

$$\int_{el} \mathbf{f}(\mathbf{x}) dS \simeq \sum_{i=1}^{12} \omega_i \mathbf{f}(\mathbf{x}_i) \quad (2.73)$$

avec  $\omega_i$  les coefficients de quadrature et  $\mathbf{x}_i$  les points de quadrature associés et définis sur l'élément de maillage considéré. Cependant, les éléments définis par [Loo87] sont courbes et il est nécessaire d'utiliser les propriétés de géométrie différentielle sur chaque élément pour effectuer l'intégration numérique.

Pour cela, on définit un repère local  $(s^1, s^2)$  sur l'élément concerné (2.6), ainsi que le tenseur métrique  $g$  qui permet de passer des coordonnées cartésiennes aux coordonnées locales de l'élément. Pour rappel, il est défini pour un point  $\mathbf{r}(s^1, s^2)$  comme [Pow10]

$$g_{\alpha\beta} = \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial s^\alpha} \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial s^\beta} \quad (2.74)$$

La relation 2.73 devient alors, en définissant  $g = g_{11}g_{22} - g_{12}g_{21}$  le déterminant du tenseur métrique et  $\sqrt{g}ds^1ds^2$  l'élément de surface sur le triangle courbe

$$\int_{el} \mathbf{f}(\mathbf{x}) dS = \int_{el} \mathbf{f}(s^1, s^2) \sqrt{g} ds^1 ds^2 \simeq \sum_{i=1}^{12} \omega_i \mathbf{f}(s_i^1, s_i^2) \sqrt{g} \quad (2.75)$$

La relation 2.16 est alors appliquée pour déterminer la position réelle de chaque point dans le repère global, ainsi que les valeurs des champs en chaque point d'intégration.

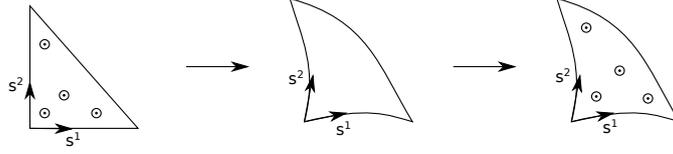


FIGURE 2.6 – Intégration spatiale sur un élément triangulaire courbe, ici à 4 points de quadrature. **De gauche à droite** : Triangle rectangle de référence, triangle déformé de coordonnées locales  $(s^1, s^2)$  et de métrique  $g$ , triangle déformé avec points d'intégration de Gauss définis sur la surface courbe.

En particulier, l'intégration de l'équation d'intégrale de frontière 2.12 nécessite un traitement spécifique, car les fonctions de Green  $G$  sont singulières lorsque le point d'observation  $\mathbf{x}$  s'approche du pôle  $\mathbf{x}_0$ . [FBM14] propose la modification de la densité de forces  $\mathbf{f}$  utilisée dans cette équation, ainsi que l'ajout à cette équation de fonctions ayant le même comportement divergent proche de  $\mathbf{x}_0$  mais facilement intégrable, de manière à surmonter ce problème numérique. On utilise ainsi l'opérateur de projection tangentielle sur la surface de calcul, qui peut être écrit sous deux formes différentes

$$\mathbf{P}_t = (\mathbf{I} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}) \cdot \mathbf{f} = -[\mathbf{n} \times [\mathbf{n} \times \mathbf{f}]] \quad (2.76)$$

avec  $\mathbf{n}$  la normale à la surface tournée vers le fluide externe et  $\mathbf{I}$  le tenseur identité. On appliquera également l'identité suivante, obtenue en remplaçant la fonction de Green par son expression en écoulement libre et en intégrant sur le volume

$$\int_S G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) e_{jkl} n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) = -\frac{\epsilon_{ijl}}{4\pi} \int_S \frac{(x_0j - x_j)(x_0k - x_k) n_k(\mathbf{x})}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0|^3} dS(\mathbf{x}) \quad (2.77)$$

$$\epsilon_{ijk} = \begin{cases} 0 & \text{si deux des indices sont égaux} \\ +1 & \text{si } i, j, k \text{ forment une permutation paire de } 1, 2, 3 \\ -1 & \text{si } i, j, k \text{ forment une permutation impaire de } 1, 2, 3 \end{cases} \quad (2.78)$$

Ainsi, on peut reformuler l'équation 2.12 par l'introduction d'une force modifiée  $\tilde{\mathbf{f}}$  telle que

$$\tilde{\mathbf{f}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) = \mathbf{f}(\mathbf{x}) - \mathbf{n}(\mathbf{x})(\mathbf{f}(\mathbf{x}_0) \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}_0)) + [\mathbf{n}(\mathbf{x}) \times [\mathbf{n}(\mathbf{x}_0) \times \mathbf{f}(\mathbf{x}_0)]] \quad (2.79)$$

$$\int_S G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) f_j(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) = \int_S G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) \tilde{f}_j(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) dS(\mathbf{x}) + \frac{[\mathbf{n}(\mathbf{x}_0) \cdot \mathbf{f}(\mathbf{x}_0)]_l e_{ijl}}{4\pi} \int_S \frac{(x_{0j} - x_j)(r_{0k} - r_k) n_k(\mathbf{x})}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0|^3} dS(\mathbf{x}) \quad (2.80)$$

On a ainsi  $\tilde{\mathbf{f}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) = o(|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0|)$  pour  $\mathbf{x}$  se rapprochant de  $\mathbf{x}_0$  et  $(\mathbf{x} - \mathbf{x}_0) \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}_0) = o(|\mathbf{x} - \mathbf{x}_0|^2)$  lorsque  $\mathbf{x}$  s'approche de  $\mathbf{x}_0$  le long de la surface  $S$ . Ainsi, si  $\mathbf{f}$  est continue et  $\mathbf{x} \neq \mathbf{x}_0$ , cette équation intégrale sera continue et finie, simplifiant la résolution numérique de l'équation intégrale globale [2.12](#).

# 3 Dynamique d'une goutte avec viscosités interfaciales sous écoulement

## 3.1 Dynamique d'une goutte sous écoulement

Une "goutte", comme dans la vie courante, désigne ici un volume de liquide d'une taille caractéristique inférieure à la longueur capillaire. Cette goutte est généralement plongée dans un autre liquide, qui servira de milieu de suspension. Nous nous intéresserons ici seulement à des milieux immiscibles, c'est-à-dire ne se mélangeant pas, pour lesquels la quantité physique la plus importante pour décrire l'interface est la tension de surface. Cette tension de surface a la dimension d'une énergie par unité de surface, c'est donc le coût énergétique de création d'une unité de surface. Dans le cas où l'interface entre les deux liquides est "simple", c'est-à-dire composée uniquement des molécules des deux fluides, on peut comprendre l'existence de la tension de surface en considérant d'une part les interactions s'exerçant sur une molécule au sein du fluide, et d'autre part les interactions sur une molécule à l'interface entre les deux fluides. On voit alors que cette dernière a un "déficit" d'interactions par rapport à une molécule au sein du fluide, ce qui se traduirait par une résultante de force l'attirant vers l'intérieur. Cette résultante est compensée par la pression à l'intérieur de la goutte, donnée par la loi de Laplace :  $p_{int} - p_{ext} = \frac{2\gamma}{R}$ , où  $\gamma$  est la tension de surface,  $R$  le rayon de courbure de l'interface, et  $p_i, p_e$  la pression à l'intérieur/extérieur du liquide.

Nous nous intéressons dans ce chapitre à la déformation par un écoulement d'une goutte sans contraste de viscosité. Plus précisément, nous allons nous intéresser à l'influence de la viscosité interfaciale sur la déformation d'une goutte dans un écoulement extensionnel en régime de Stokes. De très nombreuses études ont déjà été consacrées à la déformation d'une goutte par un écoulement en régime de Stokes, on renvoie par exemple aux revues de [Ral84; Sto94; GG04; Win+05; GP10] pour un panorama des études réalisées. Dans cette section, on se contentera de souligner quelques unes des questions intéressant la communauté sur ces sujets. Après ce rapide tour d'horizon, nous nous intéresserons plus spécifiquement aux études incluant les effets de viscosité interfaciales, qui sont nettement moins nombreuses.

La goutte est en effet un des objets "classiques" de la matière molle et de la

mécanique des fluides, d'une part car sa mécanique interfaciale peut être appréhendée de façon relativement simple à l'aide de la tension de surface, et d'autre part car elle apparaîtra naturellement dès lors que l'on considère deux milieux immiscibles à des échelles inférieures à la longueur capillaire : on peut penser aux problèmes d'émulsion, de fragmentation, de suspensions multiphasiques. Une voie d'étude de ces problèmes consiste à s'intéresser à la limite "diluée" de ces systèmes, où à l'extrême on s'intéresse à la dynamique individuelle d'une goutte en suspension dans un autre liquide. Lorsqu'on mettra en écoulement ce liquide de suspension, les efforts hydrodynamiques exercés sur la goutte la déformeront. Par réaction, la déformation de la goutte modifiera l'écoulement externe, ce qui aura une influence par exemple sur la viscosité apparente de la solution. D'autre part, si les déformations sont importantes, la goutte peut également se fragmenter, produisant alors une collection de gouttes. La question de la taille et de la distribution des fragments est encore une question de recherche très active. Les premières études de déformations de goutte sous écoulement remontent probablement aux travaux de Taylor [Tay32 ; Tay34], et nombre des questions posées alors (viscosité effective d'une suspension de gouttes, intensité critique de l'écoulement pour obtenir la fragmentation) restent d'actualité, en particulier en considérant les effets notables que peuvent avoir sur ces questions la présence de surfactants. Par exemple, [YD98] observent une variation de la vitesse de migration d'une bulle dans une solution de protéines au fur et à mesure que les protéines s'adsorbent à l'interface de la bulle. De même, les surfactants facilitent la production d'émulsions en empêchant la coalescence des gouttes dans le fluide environnant [BCP99]. Sous écoulement, une goutte à laquelle sont adsorbées des molécules tensioactives manifeste de nouvelles dynamiques telles que le tip-streaming [De 93 ; De 93]. Quels effets physiques peuvent expliquer l'influence des surfactants ? En adoptant un point de vue mésoscopique où l'interface est vue comme une surface de séparation bien définie entre la goutte et son milieu de suspension, la présence de surfactants va affecter les propriétés mécaniques de la surface de deux façons :

- Effet Marangoni : la tension de surface dépend de la concentration locale en surfactants. Une répartition inhomogène le long de l'interface conduit à des gradients de tension de surface, ce qui induit une composante tangente dans les efforts que l'interface transmet aux fluides environnants, et génère des écoulements appelés "écoulements Marangoni" ;
- Viscosités surfaciques : la friction des surfactants entre eux à l'interface conduit à des contraintes à la surface dépendant des gradients de vitesse surfaciques.

Ces deux mécanismes peuvent se comprendre en visualisant l'interface comme une phase fluide distincte constituée par les surfactants : il s'agit alors d'un fluide bidimensionnel (dans un espace courbe), compressible et visqueux. Mais, contrairement à une situation d'écoulement classique, ce fluide compressible est aussi éventuellement connecté à des réservoirs de matière qui sont constitués par

les liquides internes et externes dans le cas où les surfactants sont solubles dans l'une ou les deux phases. Une modélisation complètement générique nécessite donc de décrire un problème de mécanique des fluides compressibles en 2D sur un espace courbe, en écrivant :

- la conservation de la quantité de mouvement d'une particule fluide de l'interface : dans le cas où son inertie est négligeable, c'est l'équation de l'équilibre mécanique de l'interface, qui fait intervenir d'une part la tension de surface, les viscosités de surface, et d'autre part le saut des contraintes visqueuses qui jouerait le rôle d'une force extérieure ;
- la conservation de la quantité de matière : l'advection des surfactants par les écoulements d'interface est équilibrée par la diffusion le long de l'interface, ainsi que par les termes d'échange avec les milieux interne et externe ;
- une loi d'état reliant la tension de surface (l'équivalent surfacique de la pression) à la concentration de surfactants (i.e. à la densité de surfactants). On peut aussi considérer les effets de la variation de densité de surfactants sur les viscosités surfaciques.

La résolution analytique ou numérique de ce problème général est complexe, car elle implique de traiter :

1. les écoulements interne et externe à la goutte décrits par les équations de Stokes, avec une géométrie variable (car l'interface se déforme) ;
2. l'advection-diffusion des surfactants dans les phases fluides, ainsi que leur adsorption-désorption sur l'interface ;
3. la déformation de l'interface, dont la forme intervient comme condition de bord dans tous les problèmes volumiques des points précédents (1 et 2) ;
4. l'advection-diffusion des surfactants **sur** l'interface, donc en géométrie courbe, qui est de plus une inconnue du problème (cf. point 3).

Nous allons dans ce manuscrit simplifier considérablement l'étude, en supposant que la densité de surfactants à l'interface est essentiellement constante. Cela pourrait correspondre à une situation où les surfactants ont une dynamique d'adsorption/désorption rapide, ce qui conduit à être localement à la concentration d'équilibre, ou à une situation où les surfactants diffusent rapidement et où l'élasticité de Gibbs est faible. Bien que cette limite soit probablement difficile à réaliser expérimentalement, elle présente l'avantage de se focaliser uniquement sur le rôle des viscosités interfaciales sur la dynamique en la comparant à une goutte sans surfactants, ce qui rajoute déjà deux paramètres sans dimension à l'étude. Une modélisation plus raffinée pourrait inclure le point 4 (évolution de la densité de surfactants sur l'interface par advection-diffusion, en considérant des surfactants insolubles pour pouvoir négliger l'adsorption-désorption). Cela introduirait deux nouveaux nombres sans dimension : le nombre de Péclet surfacique (compétition entre advection et diffusion sur l'interface) et un paramètre mesurant l'importance des gradients de concentration (ratio entre élasticité de

Gibbs et tension de surface de référence). Une étude très récente [LSB18] prenant en compte ces paramètres (mais pas l'adsorption-désorption) montre que l'inclusion de ces paramètres ne modifie pas qualitativement l'effet des viscosités interfaciales, mais seulement quantitativement (avec des écarts pouvant aller jusqu'à 30% sur la valeur du paramètre de Taylor, voire 100% sur le nombre capillaire critique). Bien que ces écarts puissent être importants, cette étude montre aussi que l'effet des paramètres peut être étudié isolément : ainsi, l'inclusion de la viscosité surfacique de cisaillement a toujours le même effet, à savoir diminuer la déformation et donc augmenter le nombre capillaire critique, et ce, quelles que soient les valeurs des autres paramètres.

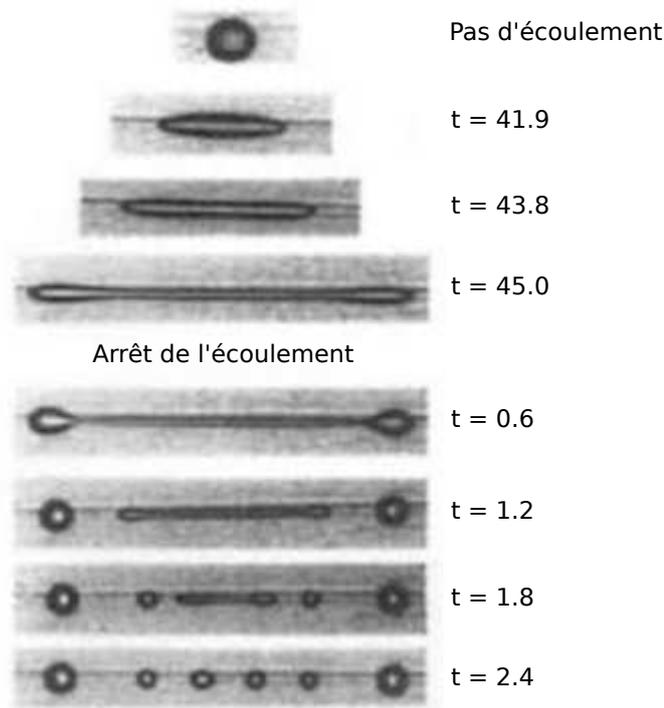


FIGURE 3.1 – Déformation, relaxation et rupture d'une goutte initialement sphérique sous écoulement extensionnel avec  $\lambda = \eta_e/\eta_i = 0.046$  [SBL86]. Cette situation illustre bien les différents aspects qui peuvent être étudiés : une goutte initialement sphérique est étirée par l'écoulement extensionnel, suivant la valeur des paramètres, la goutte atteint une forme stationnaire ou non. Lorsque l'écoulement est arrêté, la goutte relaxe en se rétractant, et en suivant un autre "chemin" que lors de l'étirement. Des instabilités qui n'étaient pas présentes dans le cas de l'étirement peuvent alors apparaître et conduire à la rupture de la goutte.

La dynamique d'une goutte dont l'interface présente un comportement visqueux a été théorisé par [Scr60], qui définit deux viscosités interfaciales pour

décrire les contraintes visqueuses à l'interface. Par la suite, [WSS74] calcule analytiquement le champ de vitesse autour d'une goutte quasi-sphérique et propose de l'utiliser pour en déduire la quantité  $3\mu_d + 2\mu_s$  avec  $\mu_d$ . [Flu80b] propose un modèle pour l'orientation et la déformation de gouttes dans un écoulement linéaire. [AW79] considèrent une goutte avec viscosités de surface dus à la présence de surfactants et en étudient analytiquement les effets, en prenant en compte le transfert de surfactant de la phase continue à l'interface. Les premières études numériques concernant les effets de viscosité de surface sur la dynamique d'une goutte sous écoulement, comme [Poz94], bénéficient de l'intérêt grandissant pour la dynamique d'interfaces soumises à un écoulement à bas  $Re$ , et ont ouvert la voie à de nombreux résultats ([Sch+11], [Gou+16], [RLK10]).

Lorsqu'une goutte initialement sphérique est soumise à un écoulement extensionnel plan, elle se déforme dans la direction d'étirement principal de l'écoulement. Si l'intensité de l'écoulement est suffisamment importante, les forces interfaciales ne sont plus capables de conserver l'intégrité de la goutte, qui se disloque : on parle de *breakup*. La dynamique de la goutte dépend des propriétés physiques et chimiques des phases continue et discrète, mais également de l'interface. Ainsi, [AW79] observent une influence de la viscosité interfaciale de dilatation sur la vitesse de migration d'une goutte dans une solution de surfactants. Il est donc attendu que la viscosité interfaciale joue un rôle dans la dynamique d'une goutte soumise à un écoulement externe. Le comportement observé permettra ainsi de préciser le rôle de chacune des viscosités de surface et de comparer leurs contributions.

## 3.2 Déformation d'une goutte visqueuse sous écoulement extensionnel plan

### 3.2.1 Paramètres de l'étude

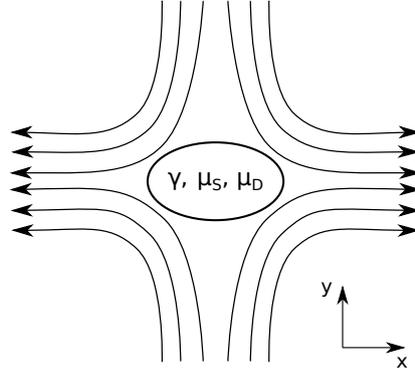


FIGURE 3.2 – Goutte initialement sphérique plongée dans un écoulement extensionnel plan (ou écoulement hyperbolique)

Nous étudions ici la dynamique d'une goutte de rayon  $R_0$  lorsqu'elle est non déformée et dont l'interface est caractérisée par une tension interfaciale  $\gamma$  et un comportement visqueux à l'interface. Ce comportement est décrit par deux viscosités d'interface, l'une de cisaillement  $\mu_S$  et l'autre de dilatation  $\mu_D$ , reliées par le tenseur des contraintes visqueuses tel que décrit dans [Scr60] :

$$\sigma^{visc} = \gamma \mathbf{P} + (\mu_d - \mu_s) \Theta \mathbf{P} + 2\mu_s \epsilon \quad (3.1)$$

avec  $\mathbf{P}$  le tenseur projecteur dans le plan de l'interface,  $\Theta$  le taux de dilatation surfacique et  $\epsilon$  le tenseur surfacique des taux de déformations, tels que définis dans la partie .

La goutte est plongée dans un fluide visqueux de viscosité dynamique  $\eta$ . On peut construire deux nombres sans dimensions qui permettront de quantifier les viscosités interfaciales par rapport à la viscosité du fluide externe, les nombres de Boussinesq  $Bq_s$  et  $Bq_d$  tels que

$$Bq_s = \frac{\mu_S}{R_0 \eta} \quad Bq_d = \frac{\mu_D}{R_0 \eta} \quad (3.2)$$

La particule est alors soumise à un écoulement extensionnel plan (figure 3.2) d'intensité  $\dot{\gamma}$ , ce qui permet de définir le nombre capillaire  $Ca$  de la manière

suivante :

$$Ca = \frac{\dot{\gamma} R_0 \eta}{\gamma} \quad (3.3)$$

### 3.2.2 Phénoménologie

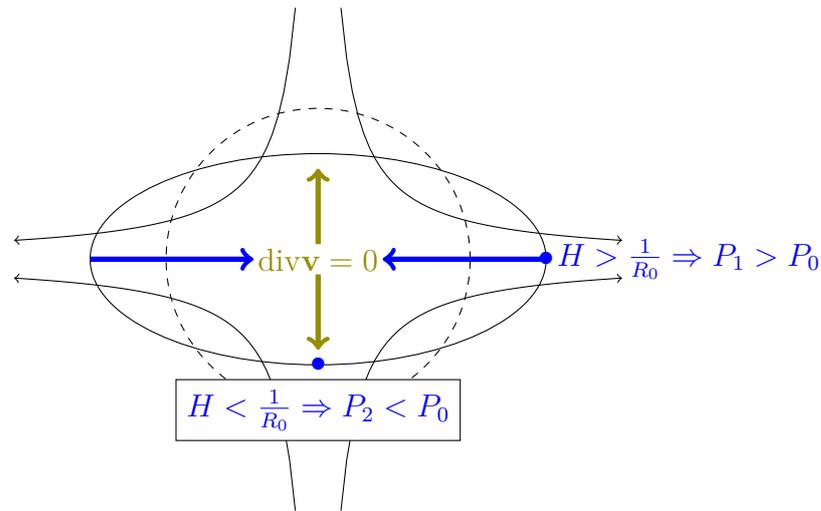


FIGURE 3.3 – Mécanisme de stabilisation d’une goutte dans un écoulement extensionnel.

La forme sphérique correspond à  $D_T = 0$ , pour  $\dot{\gamma}t = 0$ . L’écoulement externe déforme l’interface et l’étire dans la direction principale d’écoulement. A partir d’un certain temps de simulation, la goutte acquiert une forme stationnaire prolate, définie tant que la valeur de  $Ca$  ne dépasse pas la valeur critique  $Ca_C$  pour laquelle la goutte se rompt.

On peut comprendre le mécanisme de stabilisation en regardant qualitativement le contre-écoulement engendré par la déformation, comme décrit sur la figure 3.3. La courbure aux pointes est plus grande que la courbure de référence, ce qui par la loi de Laplace donne une surpression interne. A contrario, la courbure aux pôles est plus faible que la courbure de référence, ce qui entraîne une pression plus faible. Le gradient de pression entre la pointe et le centre conduit à un contre-écoulement allant des pointes vers le centre et, par incompressibilité du fluide interne, du centre vers les pôles. Plus la déformation est importante, plus l’intensité de ce contre-écoulement est importante : lorsque celle-ci atteint l’intensité de l’écoulement externe, la forme est stabilisée. On peut également comprendre qualitativement l’existence d’un nombre capillaire critique par le raisonnement suivant : considérons une forme très étirée comme celles observées expérimentalement ou dans les simulations, cf figure 3.29.

Pour simplifier, nous nous plaçons dans une situation axisymétrique. Au premier ordre, cette forme peut alors être décrite comme un cylindre de longueur  $2L$  et de rayon  $r$  ( $\ll L$ ), fermé à son extrémité par deux demi-sphères de rayon  $r$ .

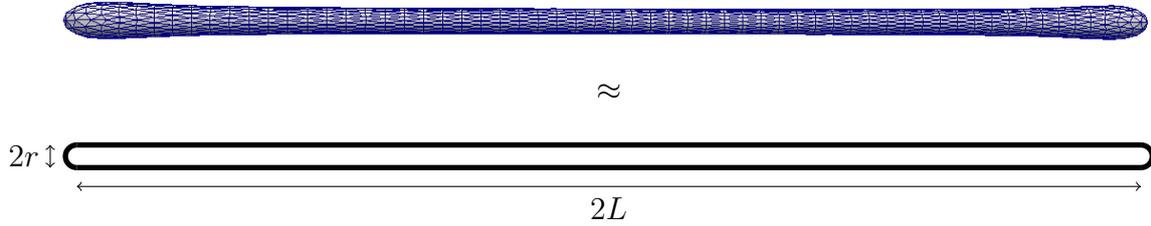


FIGURE 3.4 – Approximation géométrique simple d'une forme très étirée caractéristique des formes instationnaires (ici,  $Ca = 0.2$ ,  $\lambda = 11.3$ ,  $\dot{\gamma}t \approx 4$ ) : la goutte est approximée par un cylindre de longueur  $2L$  et de rayon  $r$ , fermé par deux hémisphères.

En écrivant la conservation du volume initial :

$$\underbrace{\frac{4}{3}\pi r^3}_{\ll 2\pi r^2 L} + \pi r^2 L = \frac{4}{3}\pi R_0^3 \quad (3.4)$$

où le premier terme, correspondant au volume contenu dans les deux extrémités, devient négligeable comparé au volume contenu dans le cylindre lorsque la forme est suffisamment étirée. Ainsi, le rayon et la longueur  $L$  sont reliés par :

$$r \approx \frac{2}{3} \frac{R_0^{3/2}}{L^{1/2}} \quad (3.5)$$

D'autre part, le saut de pression à la pointe, donné par la loi de Laplace, vaut :

$$\Delta P_{pointe} \approx \frac{2\gamma}{r} \quad (3.6)$$

alors que le saut de pression au centre, vaut seulement (car la courbure longitudinale est alors négligeable) :

$$\Delta P_{centre} \approx \frac{\gamma}{r} \quad (3.7)$$

Il y a donc un gradient de pression entre la pointe et le centre, ce qui conduit à un écoulement, dont on peut estimer l'intensité typique en supposant un profil de Poiseuille à l'intérieur du cylindre :

$$v \sim \frac{r^2}{\eta} \frac{\Delta P}{L} \sim \frac{\gamma}{\eta} \frac{r}{L} \sim \frac{\gamma}{\eta} \frac{R_0^{3/2}}{L^{3/2}} \quad (3.8)$$

Ainsi, la vitesse du contre-écoulement à la pointe évolue comme  $L^{-3/2}$ , alors que la vitesse de l'écoulement extérieur évolue comme  $\dot{\gamma}L$  : pour  $L$  suffisamment grand, le contre-écoulement n'est pas suffisant pour stabiliser la forme, et celle-ci croît de façon indéfinie.

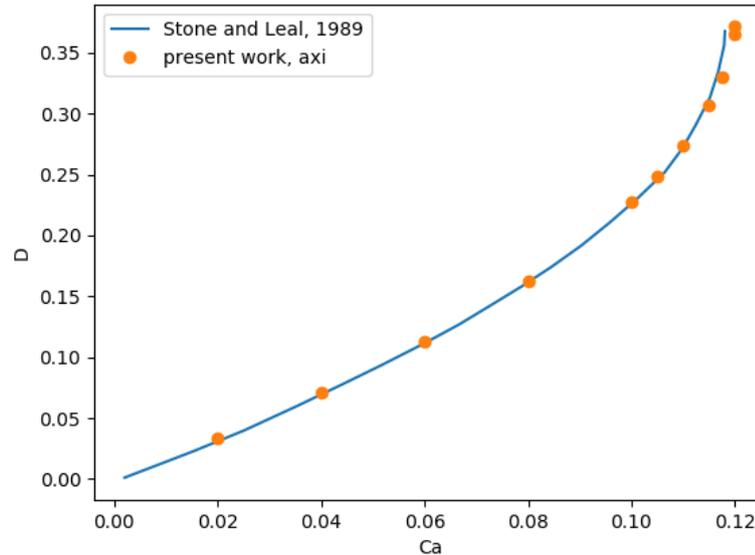
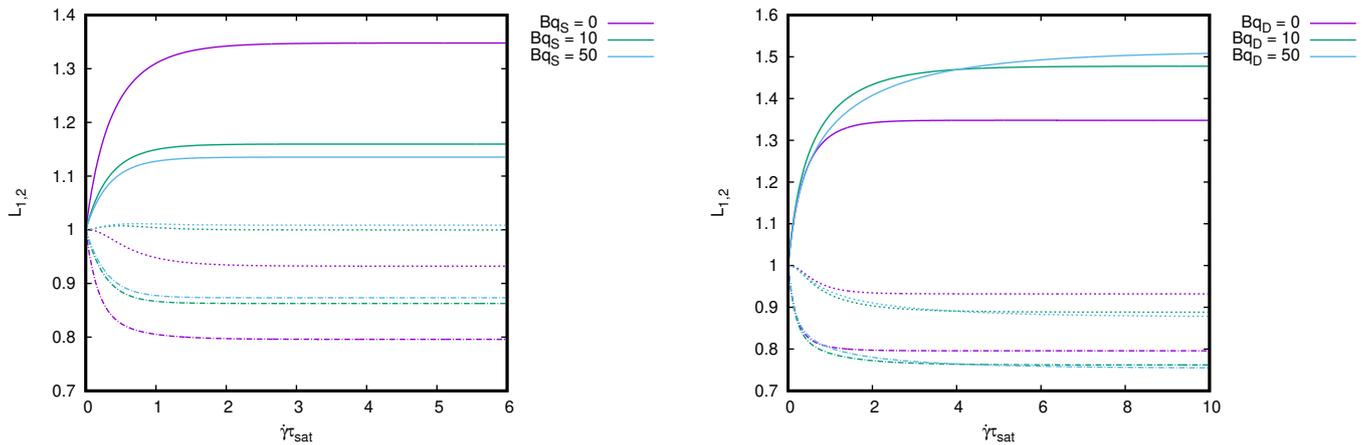


FIGURE 3.5 – Paramètre de Taylor en fonction du nombre capillaire pour un écoulement extensionnel axisymétrique uniaxe. Les simulations sont comparées aux résultats obtenus par [SL89] pour le cas axisymétrique.

Ainsi, pour de faibles vitesses d'écoulement, la déformation est modérée, le contre-écoulement est suffisant pour stabiliser la forme (situation de la figure 3.3). En augmentant l'intensité de l'écoulement, la déformation augmente, le gradient de pression entre la pointe et le centre est plus faible (car la longueur augmente) et la vitesse du contre-écoulement n'est alors plus suffisante pour contrebalancer l'écoulement extérieur, la forme s'étire "à l'infini". On observe effectivement ce comportement lorsqu'on trace l'évolution du paramètre de Taylor en fonction du nombre capillaire, comme sur la figure 3.5 : à faible nombre capillaire, la déformation évolue de façon linéaire, puis diverge à l'approche d'un nombre capillaire critique, de l'ordre de 0.12 dans le cas d'un écoulement extensionnel axisymétrique uniaxe. Nous comparons nos résultats de simulation aux résultats obtenus par [SL89], et observons un très bon accord avec ceux-ci.

### 3.3 Petites déformations : influence des viscosités interfaciales et comparaison avec la théorie de Flummerfelt.

Nous commençons par nous intéresser à l'effet des viscosités interfaciales sur la déformation stationnaire de la goutte dans un écoulement hyperbolique. Dans cette situation, et dans la limite des petites déformations par rapport à la forme sphérique, le calcul théorique de [Flu80b] nous servira de point de référence. Nous pourrions ainsi discuter de son domaine de validité, et l'utiliser pour analyser qualitativement l'effet des différentes viscosités. Lorsque l'on place une goutte initialement sphérique au centre d'un écoulement hyperbolique, celui-ci étire la goutte dans le sens de l'écoulement, la déformant en une forme ellipsoïdale. Pour caractériser la déformation de la goutte, on peut suivre l'évolution au cours du temps des trois axes d'inertie de la goutte, adimensionnés par le rayon de la sphère initiale. Un exemple d'évolution temporelle de ces trois axes est présenté en figure 3.6 pour un  $Ca = 0.1$ . On observe une première évolution rapide, où l'axe d'inertie aligné avec l'écoulement d'extension est étiré ( $L_x > 1$ ), tandis que l'axe aligné avec la partie compressive de l'écoulement diminue ( $L_y < 1$ ). Après cette première dynamique relativement rapide (qualitativement de la forme  $L_\infty(1 - e^{-t/\tau})$ ), soit la goutte atteint un état stationnaire, soit les axes continuent d'évoluer (comme on peut le voir sur la figure 3.6 (b) pour  $Bq_d = 50$ ). Plutôt que de suivre l'évolution des trois axes de la goutte, nous utiliserons le paramètre de Taylor  $D_T = \frac{L_1 - L_2}{L_1 + L_2}$  avec les longueurs  $L_i$  de l'ellipsoïde d'inertie équivalent.



(a)  $Bq_s$  variable et  $Bq_d = 0$

(b)  $Bq_s = 0$  et  $Bq_d$  variable

FIGURE 3.6 – Évolution des longueurs  $L_1$  (trait plein),  $L_2$  (trait mixte) et  $L_3$  (trait pointillé) en fonction du temps de simulation adimensionné, pour  $Ca = 0.1$  et une forme initialement sphérique.

L'évolution de ce paramètre en fonction du temps est représentée sur la figure 3.7. On observe, comme pour les axes d'inertie, une saturation du paramètre de Taylor (sauf pour  $Bq_d = 20$ ). L'évolution dans le temps du paramètre de forme  $D_T$  peut être modélisé par une loi exponentielle. Nous choisissons de définir le paramètre de Taylor stationnaire  $D_{T,\infty}$  et le temps de saturation  $\tau_{sat}$  tels que  $D_T = D_{T,\infty}(1 - e^{-\dot{\gamma}t/(\tau_{sat})})$ . Ces deux variables permettront de comparer et interpréter les influences des différentes viscosités interfaciales.

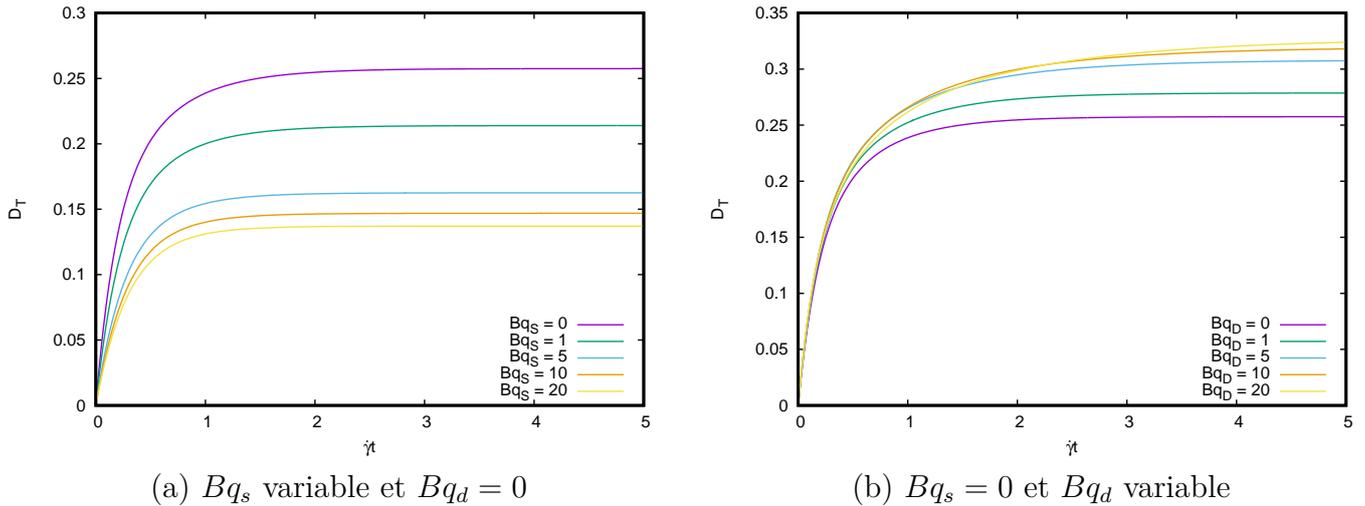


FIGURE 3.7 – Évolution du paramètre de Taylor  $D_T$  en fonction du temps de simulation adimensionné, pour  $Ca = 0.1$  et une forme initialement sphérique.

Nous observons que les viscosités interfaciales influencent la forme stationnaire adoptée par la goutte dans l'écoulement, de manière opposée : pour une viscosité de dilatation nulle et en variant la viscosité de cisaillement, nous observons que celle-ci diminue de façon importante la déformation de la goutte (cf. figure 3.7 (a)). Par ailleurs, pour une viscosité de cisaillement nulle et en variant la viscosité de dilatation, nous observons que celle-ci conduit à une légère augmentation de la déformation de la goutte. L'évolution de la valeur stationnaire du paramètre de Taylor en fonction des valeurs de  $Bq_s$  et  $Bq_d$  est représentée sur la figure 3.8. On observe ainsi que la remarque précédente se généralise : pour une valeur fixée de  $Bq_d$ , augmenter  $Bq_s$  stabilise la goutte en diminuant la déformation de l'interface. A contrario, pour une valeur de  $Bq_s$  fixée, augmenter  $Bq_d$  déstabilise la goutte en augmentant la déformation.

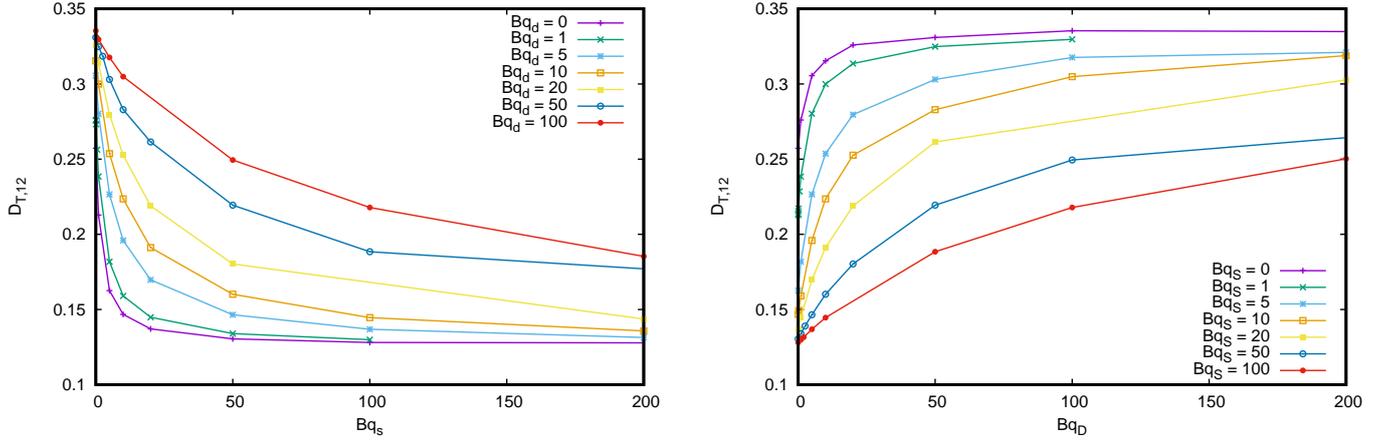


FIGURE 3.8 – Déformation stationnaire  $D_{T,\infty}$  de l'interface sous écoulement extensionnel plan pour  $Ca = 0.1$ .

Nous allons maintenant comparer ces évolutions avec la théorie linéaire développée par [Flu80b]. En partant de l'hypothèse de petites déformations autour d'une forme sphérique, celui-ci propose une estimation de la valeur de  $D_{T,\infty}$  à partir de l'intensité de l'écoulement externe et de la valeur des viscosités interfaciales. Décrivant la forme de la goutte par  $r = 1 - f(x, y)\delta$  avec  $\delta$  un paramètre de mesure de la déformation par rapport à la sphère, il obtient dans le cas d'un écoulement extensionnel plan<sup>1</sup>

$$D_{T,\infty} = \frac{10Ca(24Bq_d + 8Bq_s + 35)}{16(6Bq_d + 4Bq_s + 10)} \quad (3.9)$$

Cette expression correspond à une situation où les viscosités des deux phases fluides sont identiques, et où les effets Marangoni sont négligeables.

Nous commençons par regarder le domaine d'applicabilité de la formule de [Flu80b] en l'appliquant au cas sans viscosité interfaciale, c'est à dire pour une goutte "propre". Les résultats sont présentés sur la figure 3.9 : on observe un bon accord pour la partie faibles déformations, mais dès que le paramètre de Taylor atteint des valeurs autour de  $D_T \sim 0.15 - 0.2$ , la prédiction théorique s'éloigne des résultats numériques. Étant donné que cette théorie est basée sur une hypothèse de faible perturbation par rapport à la forme sphérique et que le développement perturbatif est effectué uniquement à l'ordre linéaire ( $O(Ca)$ ), il est normal que la divergence du paramètre de Taylor à proximité du capillaire critique ne soit pas capturée par la théorie.

1. en adaptant aux notations utilisées ici

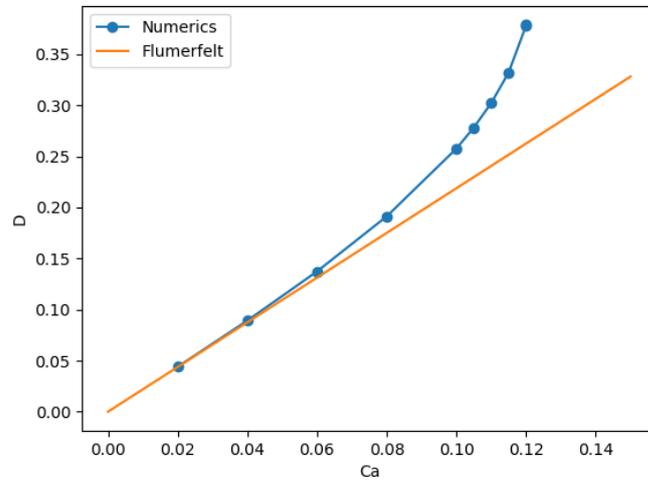


FIGURE 3.9 – Evolution du paramètre de Taylor en fonction du nombre capillaire pour une goutte "propre" ( $Bq_s = Bq_d = 0$ ) : comparaison entre simulations numériques (symboles) et théorie linéaire de [Flu80b] (courbe).

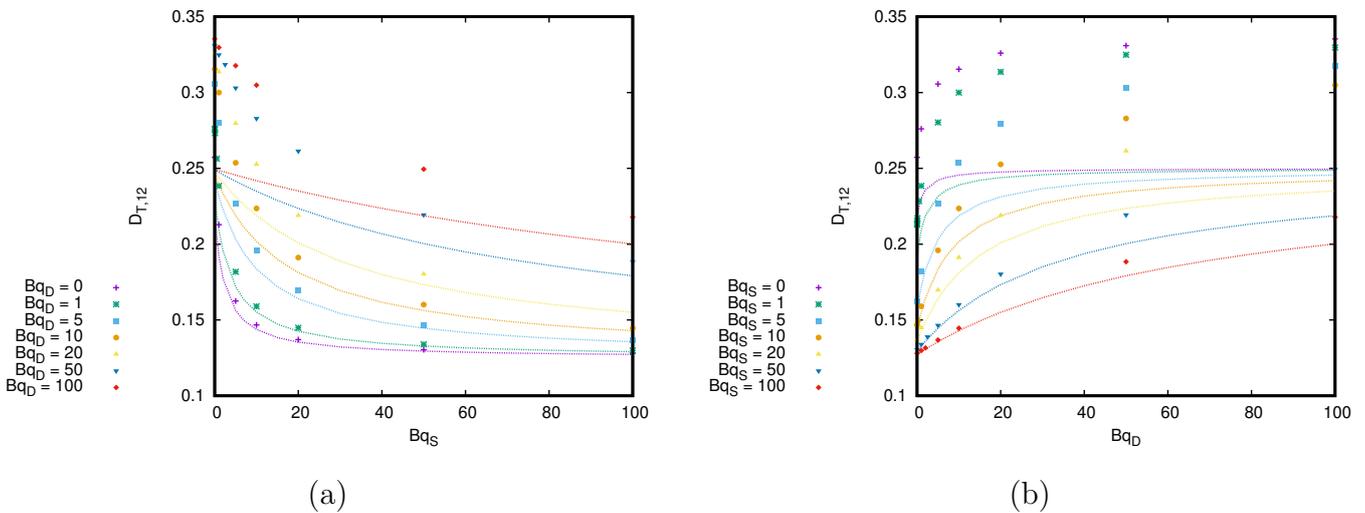


FIGURE 3.10 –  $D_{t,\infty}$  en fonction de : (a)  $Bq_s$  (b)  $Bq_d$ , pour  $Ca = 0.1$ , comparé à [Flu80a]. Les points représentent les simulations numériques, les courbes l'expression analytique de Flumerfelt.

Nous comparons les résultats des simulations numériques à la prédiction de [Flu80b] sur la figure 3.10 : les données de simulation sont représentées par des symboles, et la théorie de Flumerfelt est représentée par des courbes continues. Nous remarquons tout d'abord que la théorie est en accord qualitatif avec les ré-

sultats numériques, quelle que soit la valeur des paramètres : l'effet (dé)stabilisant de  $Bq_s$  ( $Bq_d$ ) est bien retrouvé par la théorie. Par contre, la prédiction quantitative est assez éloignée du résultat de la simulation complète, sauf lorsque les déformations sont très modérées ( $D_T \sim 0.15 - 0.2$ ). Etant donné que la théorie est développée sur une hypothèse de petites perturbations, il est assez normal que la prédiction ne soit que qualitative pour des déformations plus importantes. On retrouve ici la même tendance que dans le cas de l'écoulement de cisaillement simple [Gou+16]. Notons qu'il est possible de développer une théorie plus précise en incluant les termes d'ordre supérieur, comme cela a été réalisé dans une étude très récente [Nar18].

Pour des valeurs de  $Bq_s$  ou  $Bq_d$  suffisamment grandes, chaque simulation tend vers une forme indépendante de la viscosité interfaciale. Cette convergence dépend des deux viscosités de surface : par exemple pour  $Bq_d = 0$ , la valeur de  $D_{T,\infty}$  n'évolue plus pour  $Bq_s > 20$ , tandis que pour  $Bq_d = 10$ , la forme se stabilise à partir de  $Bq_s = 100$ . Le modèle proposé par [Flu80a] fournit ici deux valeurs limites qui dépendent uniquement de  $Ca$  :

- pour  $Bq_d \rightarrow \infty$ ,  $D_{T,\infty}/Ca = 2.5$
- pour  $Bq_s \rightarrow \infty$ ,  $D_{T,\infty}/Ca = 1.25$

Nous supposons qu'il sera pertinent uniquement pour  $Ca$  suffisamment éloigné du nombre capillaire critique  $Ca_C$  pour lequel il y a rupture de la goutte. Les mesures présentées figure 3.11 pour différentes valeurs de  $Ca$  confirment les limites de validités mentionnées ci-dessus. On peut remarquer en particulier que  $Bq_s$  a tendance à diminuer l'influence du nombre capillaire sur la précision du modèle de Flumerfelt, quel que soit l'écart du nombre capillaire  $Ca$  par rapport à sa valeur critique.

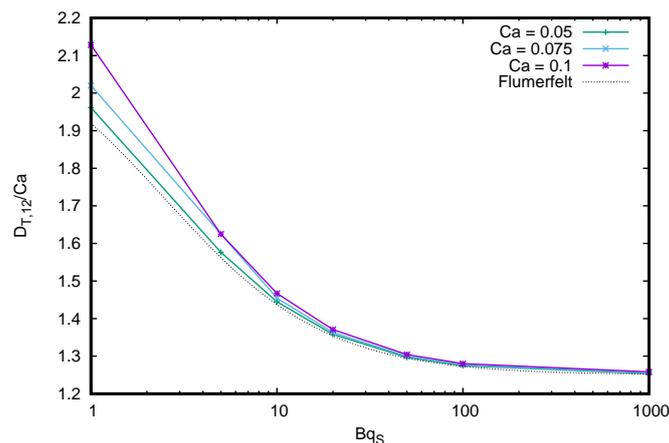


FIGURE 3.11 –  $D_T/Ca$  pour  $Bq_d = 0$  et différentes valeurs du nombre capillaire  $Ca$  : pour une viscosité de cisaillement suffisamment importante, le paramètre de Taylor tend vers une valeur indépendante de  $Bq_s$ .

### 3.4 Influence des viscosités interfaciales sur la dynamique d'approche ou de retour à l'équilibre

Dans la section précédente, nous avons étudié l'influence des viscosités interfaciales sur le paramètre de Taylor, et montré que la théorie de [Flu80b] permet de prédire qualitativement l'effet de chacune des viscosités sur la déformation stationnaire. Dans cette section, nous nous interrogeons sur l'impact des viscosités interfaciales sur la dynamique de la goutte pour atteindre cet état stationnaire, ainsi que le temps caractéristique de relaxation de la déformation stationnaire lorsqu'on coupe l'écoulement stationnaire. Pour caractériser cet effet, nous commençons par regarder la dynamique amenant à l'état stationnaire, que l'on peut approcher par la forme simple :  $D_T = D_{T,\infty}(1 - e^{-t/\tau_{sat}})$ , où  $\tau_{sat}$  définit donc un temps caractéristique de la dynamique de déformation. L'évolution du temps caractéristique adimensionné par  $\dot{\gamma}$  est représenté en figure 3.12. On observe que ce temps dépend faiblement de  $Bq_s$  dès lors qu'on a  $Bq_s \gg Bq_d$ . A contrario, le temps de saturation dépend quasi linéairement de  $Bq_d$  lorsque la viscosité de dilatation domine celle de cisaillement. On peut justifier cette différence de contribution par la constatation suivante : pour passer de la forme initiale sphérique à la forme ellipsoïdale stationnaire, il faut nécessairement augmenter la surface de la goutte (car la forme sphérique correspond à la surface minimale pour un volume donné et que ce volume est constant lors de la déformation). Ainsi, cette déformation s'accompagne nécessairement d'une dilatation-compression locale de l'interface, qui est donc pénalisée par la viscosité de dilatation.

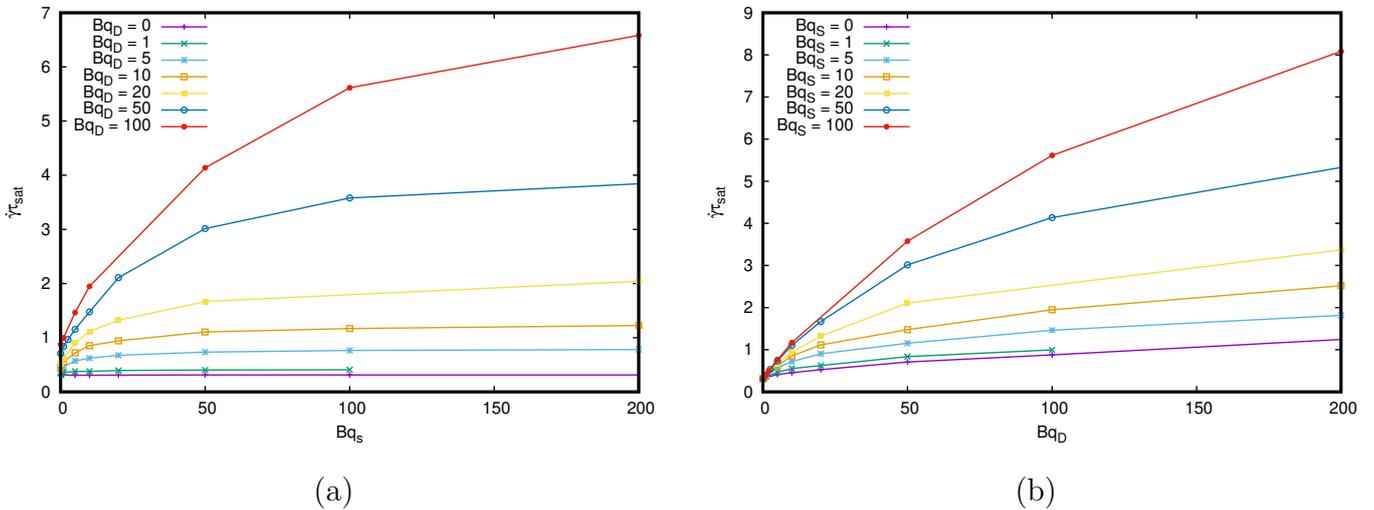


FIGURE 3.12 – Temps caractéristique de saturation de la forme  $\tau_{sat}$  pour  $Ca = 0.1$ , en fonction de : (a)  $Bq_s$  et (b)  $Bq_d$ .

Nous définissons le contraste de viscosité interfaciale  $\chi = \frac{Bq_d}{Bq_s} = \frac{\mu_d}{\mu_s}$  comme un paramètre utile pour déterminer l'influence des viscosités interfaciales sur la

dynamique globale de la goutte.

La figure 3.13 présente les résultats précédents en fonction de ce nouveau paramètre. Nous observons alors que, pour des viscosités suffisamment grandes, et un paramètre  $\chi$  fixé, le temps de saturation évolue linéairement en fonction de la viscosité de surface. De plus, le coefficient directeur de la droite est nul pour  $\chi = 0$  et croît avec  $\chi$ , comme montré sur la figure 3.14. Ce résultat s'interprète en ré-écrivant le tenseur des contraintes visqueuses interfaciales pour faire apparaître ce coefficient :

$$\sigma^{visc} = (\mu_d - \mu_s)\Theta\mathbf{P} + 2\mu_s\epsilon = \mu_s [(\chi - 1)\Theta\mathbf{P} + 2\epsilon] \quad (3.10)$$

Ainsi, on voit que dans le cas où la viscosité interfaciale domine la dynamique ( $Bq \gg 1$ ), on peut écrire (équilibre mécanique de l'interface)

$$\text{div}_s(\sigma^{visc}) \sim \mu_s \Delta_s v \sim \gamma H + [[\sigma]] \cdot \mathbf{n} \quad (3.11)$$

On voit donc que la vitesse caractéristique dépend linéairement de  $\mu_s$  pour  $\chi$  fixé.

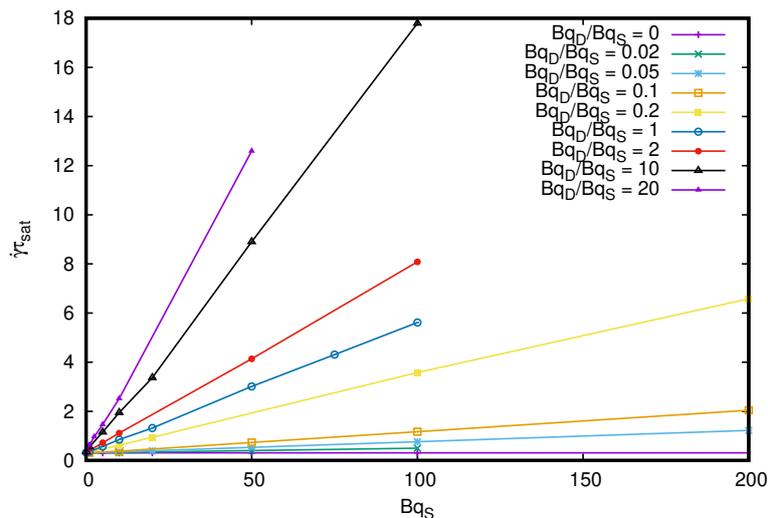


FIGURE 3.13 – Temps de saturation adimensionné  $\dot{\gamma}\tau_{sat}$  à  $\chi = Bq_d/Bq_s$  constant.

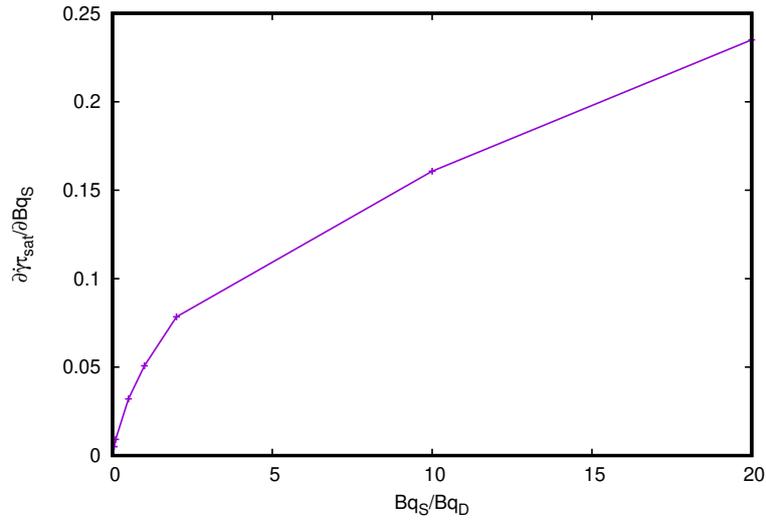


FIGURE 3.14 – Evolution du coefficient directeur de la droite  $\tau_{sat} \sim A\chi$  en fonction de  $\chi$

L'évolution de la déformation stationnaire en fonction de  $Bq_s$  pour un paramètre  $\chi$  constant est représentée sur la figure 3.15 : on observe que, lorsque les effets de viscosité de surface sont dominants par rapport aux effets des fluides internes et externes, la déformation atteint un plateau qui ne dépend que de  $\chi$ .

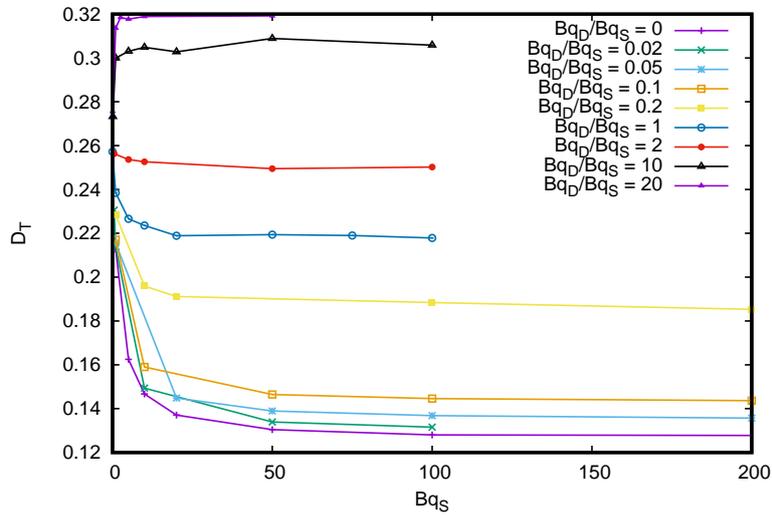


FIGURE 3.15 – Déformation stationnaire  $D_{T,\infty}$  à  $\chi = Bq_d/Bq_s$  constant.

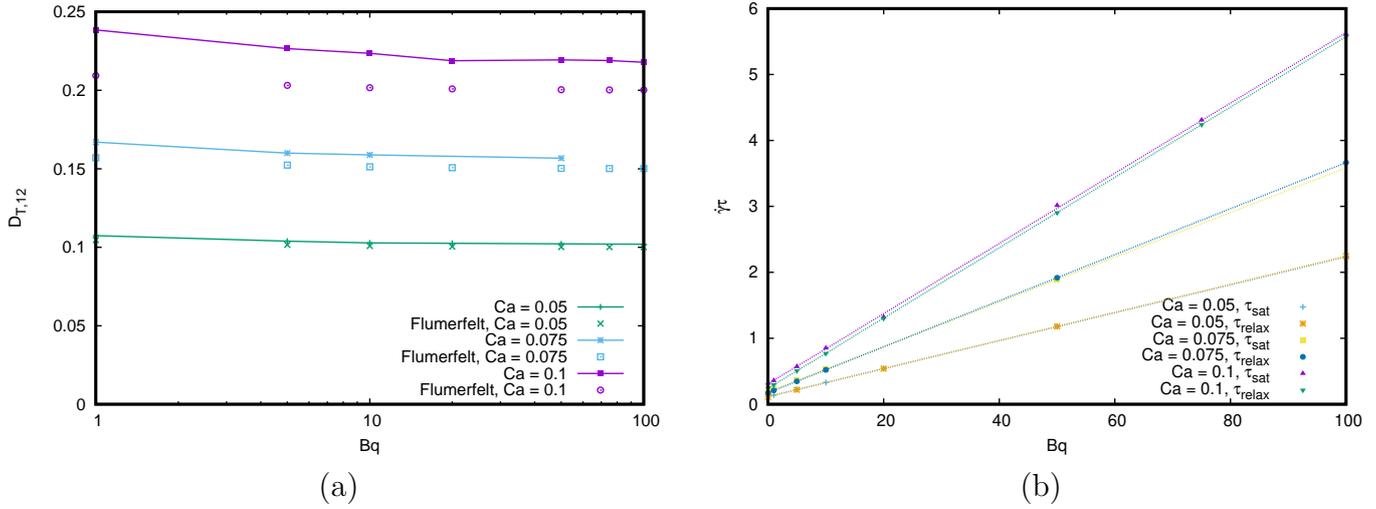


FIGURE 3.16 – Evolution du (a) paramètre de Taylor  $D_{t,\infty}$  et (b) du temps caractéristique de saturation  $\tau_{sat}$  pour  $Bq = Bq_s = Bq_d$ .

Nous étudions maintenant en particulier l'influence des viscosités interfaciales pour  $\chi = 1$  (ou  $Bq_s = Bq_d = Bq$ ) sur une goutte soumise à un écoulement hyperbolique, avec  $Ca < Ca_C$ . Le paramètre de Taylor (cf figure 3.16) est plutôt constant indépendamment de la valeur de  $Bq$ ; mais, alors que  $Ca$  augmente, la valeur théorique donnée par le modèle de Flumerfelt est moins précise à cause de la grande déformation par rapport à la sphère.

Le temps de saturation semble linéaire en  $Bq$ , tout comme le taux de relaxation  $\tau_{relax}$  défini par  $D_T = D_{T,\infty} \exp^{-t/(\tau_{relax})}$  qui correspond à une goutte déformée dont la forme retourne à la sphère. On détermine par régression l'évolution du temps de saturation et de relaxation, comme indiqué dans le tableau 3.1. On observe d'une part que la dépendance en  $Bq$  est la même pour la saturation et la relaxation. A  $Bq = 0$ , les temps caractéristiques de saturation et de relaxation sont similaires, sauf pour le capillaire le plus élevé  $Ca = 0.1$ , ce qui pourrait être lié à la déformation plus importante dans ce cas.

$Ca$	0.05	0.075	0.1
saturation, $\dot{\gamma}\tau_{sat} \approx$	$0.12 + 0.021Bq$	$0.19 + 0.034Bq$	$0.31 + 0.053Bq$
relaxation, $\dot{\gamma}\tau_{relax} \approx$	$0.11 + 0.021Bq$	$0.17 + 0.035Bq$	$0.24 + 0.053Bq$

TABLE 3.1 – Comparaison de l'évolution en fonction de  $Bq$  du temps de saturation et de relaxation pour trois nombres capillaires différents

### 3.5 Comparaison écoulement hyperbolique plan ou extensionnel axisymétrique

Dans cette section, nous comparons les phénomènes qui apparaissent dans le cas d'un écoulement extensionnel plan avec ceux sous écoulement extensionnel axisymétrique. Ceux-ci admettent des sollicitations dans les trois dimensions, et peuvent donc influencer sur la dynamique globale de la goutte.

Il est possible de décrire le champ de vitesse par une formulation matricielle. Dans ce cas, et avec  $\dot{\gamma}$  l'intensité de l'écoulement, l'écoulement extensionnel plan non perturbé devient

$$\mathbf{U}^{ext}(\mathbf{x}) = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \mathbf{x} \quad (3.12)$$

avec  $G > 0$ . L'écoulement extensionnel axisymétrique non perturbé s'exprime quant à lui sous la forme

$$\mathbf{U}^{axi}(\mathbf{x}) = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} -1/2 & 0 & 0 \\ 0 & -1/2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \mathbf{x} \quad (3.13)$$

Il existe dans le second cas une sollicitation hydrodynamique selon les trois axes définis, contrairement à l'écoulement extensionnel plan. De plus, dans ce second cas, le signe de  $\dot{\gamma}$  peut être positif ou négatif. La dynamique de l'interface sera différente selon ce paramètre, une comparaison sera également faite entre ces deux cas distincts.

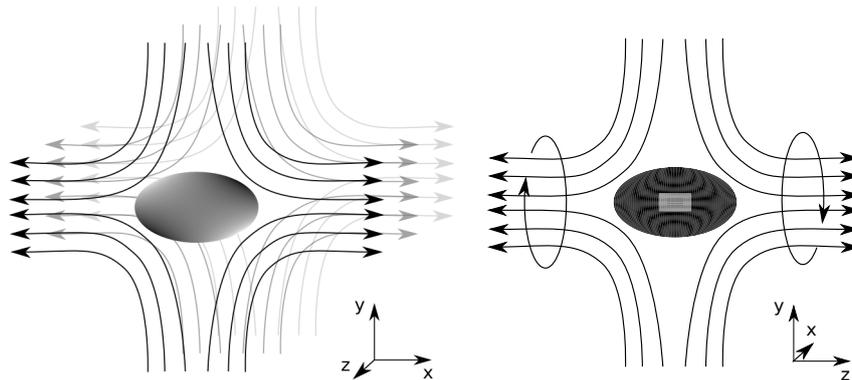


FIGURE 3.17 – Écoulements externes imposés. **A gauche** : écoulement extensionnel plan. **A droite** : écoulement extensionnel axisymétrique.

L'intensité de l'écoulement externe est telle que  $Ca = 0.1$  dans cette étude. D'après [SL89], le nombre capillaire critique à partir duquel une goutte sans vis-

cosité d'interface sous écoulement extensionnel se situe autour de 0.12. La valeur de  $Bq_s$  et  $Bq_d$  est modifiée à chaque simulation. Pour chaque cas, les longueurs  $L_n$  de l'ellipsoïde équivalent d'inertie sont évaluées à l'aide d'une fonction de type  $L_n/R_0 = 1 + l_{n,\infty}(1 - \exp^{-t/(\tau_{sat})})$ .

Lorsque  $\chi = 1$  (ou  $Bq_s = Bq_d = Bq$ ), l'effet de la viscosité interfaciale est limité quelle que soit la longueur et le type d'écoulement. La déformation  $l_n$  varie d'environ 5% entre  $Bq = 0$  et  $Bq = 100$  (figure 3.18). Bien que l'élongation dans la direction principale de l'écoulement  $e_x$  soit similaire dans le cas plan ou axisymétrique, la symétrie de la sollicitation externe dans le second cas a pour conséquence un étirement équivalent sur les deux autres axes. La longueur correspondant à la direction orthogonale au plan de l'écoulement  $e_z$  est la moins affectée par l'écoulement plan; cependant, elle varie de 10% environ sous l'influence de l'écoulement.

Le temps nécessaire à la stabilisation de la forme est linéaire en  $Bq$  pour l'écoulement axisymétrique également, comme illustré figure 3.18. La goutte stabilise en premier lieu sa forme dans le plan orthogonal à celui de l'écoulement plan, avant de fixer la longueur d'étirement principale. Dans le cas axisymétrique, ce sont les deux axes radiaux qui se stabilisent en premier. La goutte se stabilise globalement plus vite dans le cas extensionnel plan que dans le cas axisymétrique.

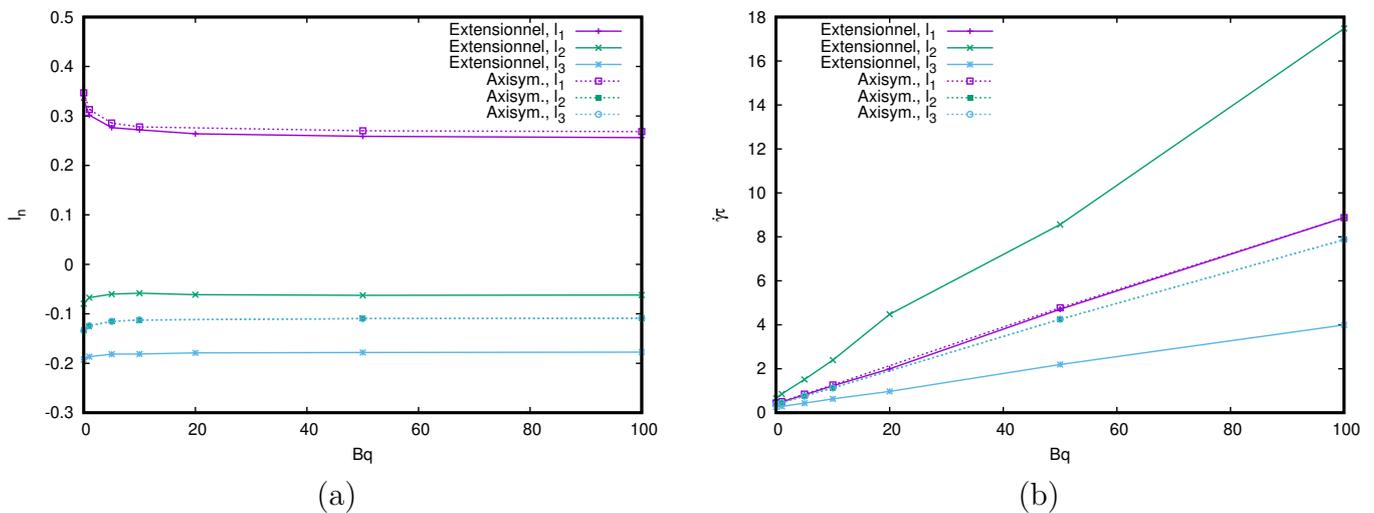


FIGURE 3.18 – Dynamique d'une goutte sous écoulement extensionnel plan (trait plein) et extensionnel axisymétrique (trait pointillé),  $Ca = 0.1$  et  $Bq_s = Bq_d$ . (a)  $D_{T,\infty}$  (b)  $\tau_{sat}$ .

Lorsque  $\chi = 0$  (ou  $Bq_d = 0$ ), l'influence de  $Bq_s$  sur la forme de la goutte est plus nette (figure 3.19). Cependant, elle est similaire quel que soit le type d'écoulement. Le temps de saturation  $\tau_{sat}$  augmente avec  $Bq_s$  pour la longueur selon  $e_y$  sous écoulement plan, contrairement aux autres longueurs quel que soit

le type d'écoulement.

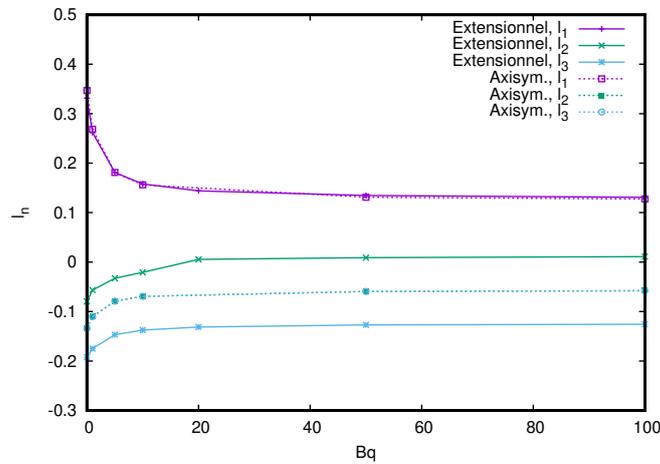


FIGURE 3.19 – Déformation d'une goutte sous écoulement extensionnel plan (trait plein) et extensionnel axisymétrique (trait pointillé),  $Ca = 0.1$  et  $Bq_d = 0$ .

Nous comparons à présent les phénomènes observés lorsqu'une goutte avec viscosité interfaciale est plongée dans un écoulement extensionnel axisymétrique avec une intensité  $\dot{\gamma} > 0$  ou  $\dot{\gamma} < 0$ . Dans les faits, le premier mènera à une forme de type prolate ( $L_1 \ll L_2 \approx L_3$ ), tandis que le second imposera à la goutte une forme oblate ( $L_1 \approx L_2 \ll L_3$ ). La figure 3.20 met en avant cette égalité dans les déformations, ainsi que la symétrie qui existe entre les deux écoulements ; cependant, l'étirement  $\dot{\gamma} > 0$  est plus important que pour  $\dot{\gamma} < 0$ . Il est également observé figure 3.21 lorsque  $Bq_d = 0$ .

Le temps de saturation à  $Bq_s = Bq_d$  évolue de manière similaire pour les deux écoulements ; cependant, proportionnellement à la déformation subie, la vitesse de déformation pour  $\dot{\gamma} < 0$  est plus lente que celle pour une intensité positive. On peut déduire de ces résultats que l'étirement selon les axes radiaux se fait en premier lieu, avant que les longueurs suivant les axes d'étirement principaux se fasse.

Lorsque la viscosité interfaciale de dilatation est négligée ( $Bq_d = 0$ ), les résultats sont similaires concernant la déformation de la goutte. Il est notable que la déformation est d'autant moins importante pour  $L_1$  lorsque  $\dot{\gamma} > 0$  dans ce cas. Le temps de stabilisation de la forme est lui particulièrement impacté par  $Bq_s$  : tandis que le temps nécessaire pour atteindre la déformation stationnaire dans les axes principaux d'étirement diminue lorsque  $Bq_s$  augmente, l'inverse se produit pour les autres longueurs. On assiste donc à une harmonisation des temps de réponse sur chaque axe, due à la viscosité interfaciale de cisaillement.

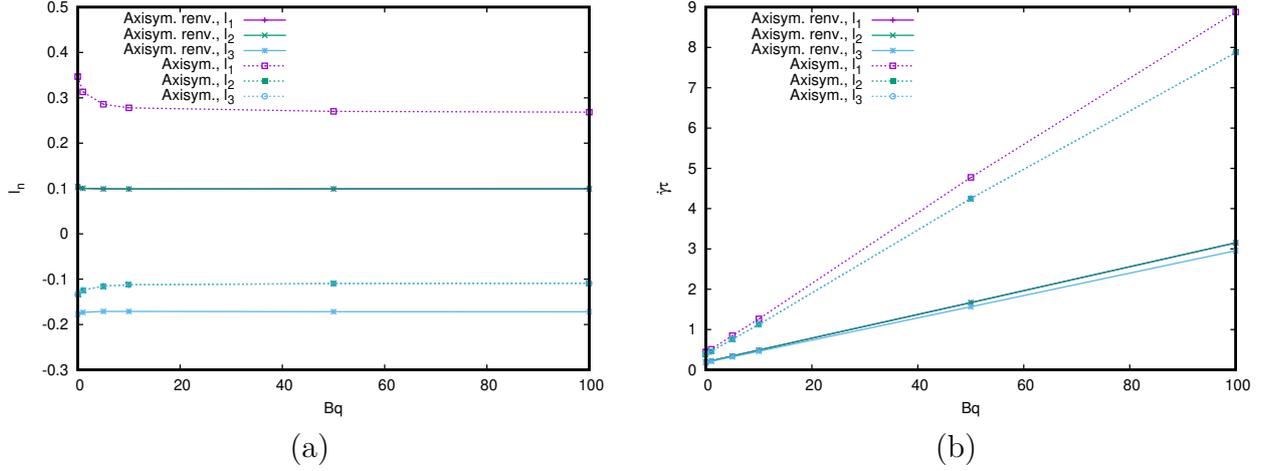


FIGURE 3.20 – Dynamique d'une goutte sous écoulement extensionnel axisymétrique avec  $\dot{\gamma} > 0$  (trait plein) et  $\dot{\gamma} < 0$  (trait pointillé),  $Ca = 0.1$  et  $Bq_s = Bq_d$ . (a)  $D_{T,\infty}$  (b)  $\tau_{sat}$ .

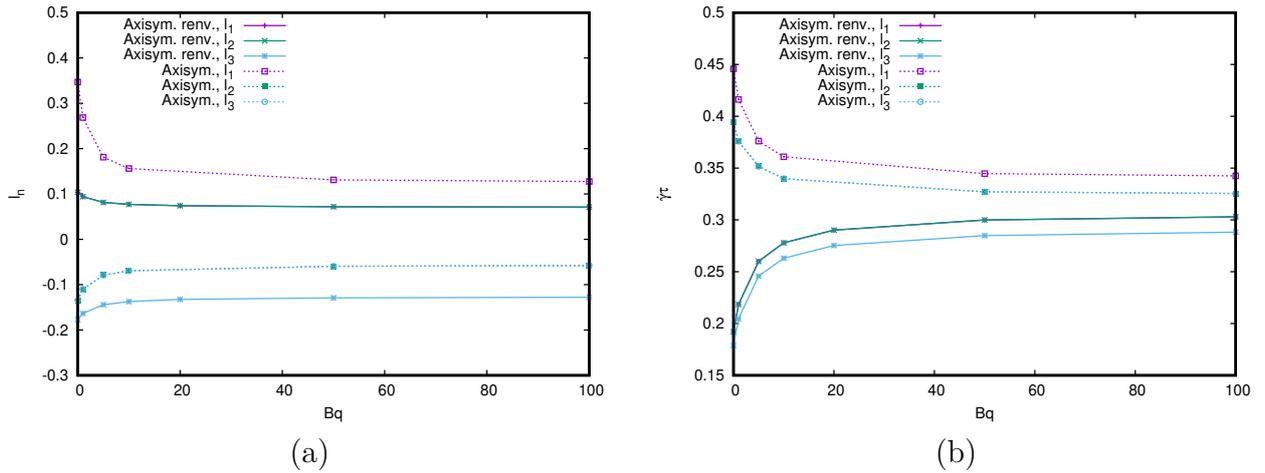


FIGURE 3.21 – Dynamique d'une goutte sous écoulement extensionnel axisymétrique avec  $\dot{\gamma} > 0$  (trait plein) et  $\dot{\gamma} < 0$  (trait pointillé),  $Ca = 0.1$  et  $Bq_d = 0$ . (a)  $D_{T,\infty}$  (b)  $\tau_{sat}$ .

Une quantité intéressante à étudier est l'intensité caractéristique de la vitesse tangente sur l'interface lorsque la forme stationnaire est atteinte. En effet, puisque nous négligeons les effets Marangoni, une goutte "propre" ne peut exercer de forces surfaciques dans la direction tangente. Supposons qu'il n'y ait pas d'écoulement à l'intérieur de la goutte, c'est-à-dire que la vitesse soit identiquement nulle à l'interface (comme pour une sphère rigide par exemple). Loin de la sphère, le champ de vitesse tend vers le champ non perturbé, il y a donc un gradient de vitesse à proximité de l'interface, et donc des contraintes visqueuses dans la di-

rection tangente. Or, l'interface ne peut pas équilibrer ces contraintes tangentes puisque nous avons négligé les gradients de tension de surface. On en déduit qu'il y a donc nécessairement recirculation à l'intérieur de la goutte pour éviter l'apparition de ces contraintes tangentes, dans le cas d'une goutte sans surfactants. En incluant les effets Marangoni ou, comme ici, les effets de viscosité surfaciques, l'interface retrouve la liberté d'équilibrer les contraintes tangentes qui apparaissent quand la vitesse tend vers zéro.

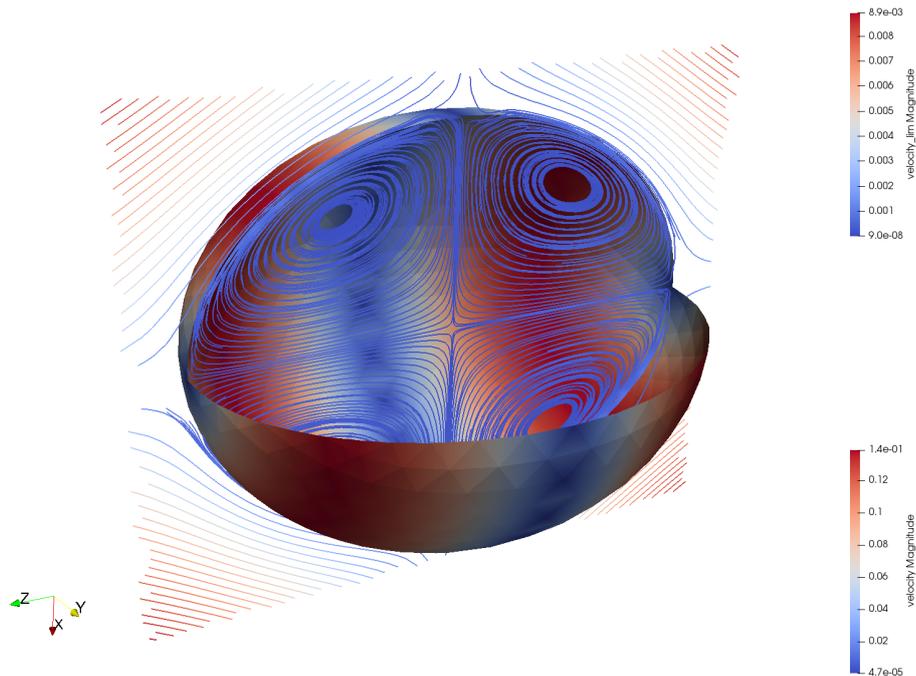


FIGURE 3.22 – Lignes d'écoulement dans le cas axisymétrique. Les couleurs indiquent l'intensité de la vitesse.

Quelle que soit la viscosité de membrane, il existe toujours une recirculation à l'intérieur, dont la forme dépend de l'écoulement imposé : dans le cas axisymétrique (cf. figure 3.22), la symétrie de rotation du problème implique que les lignes de courant internes sont assez simples, globalement structurées en deux grandes boucles de recirculation (une par hémisphère). A contrario, pour le cas plan (cf. figure 3.23), la symétrie miroir haut/bas (axe  $y$ ) et la symétrie miroir avant/arrière (axe  $z$ ) donne des lignes de courant un peu plus complexes, globalement structurées là aussi par les symétries du problème, c'est à dire en huit boucles (quatre par hémisphère). Quand la viscosité interfaciale augmente, l'intensité de l'écoulement sur la surface diminue, et par suite, l'intensité de l'écoulement à l'intérieur de la goutte également.

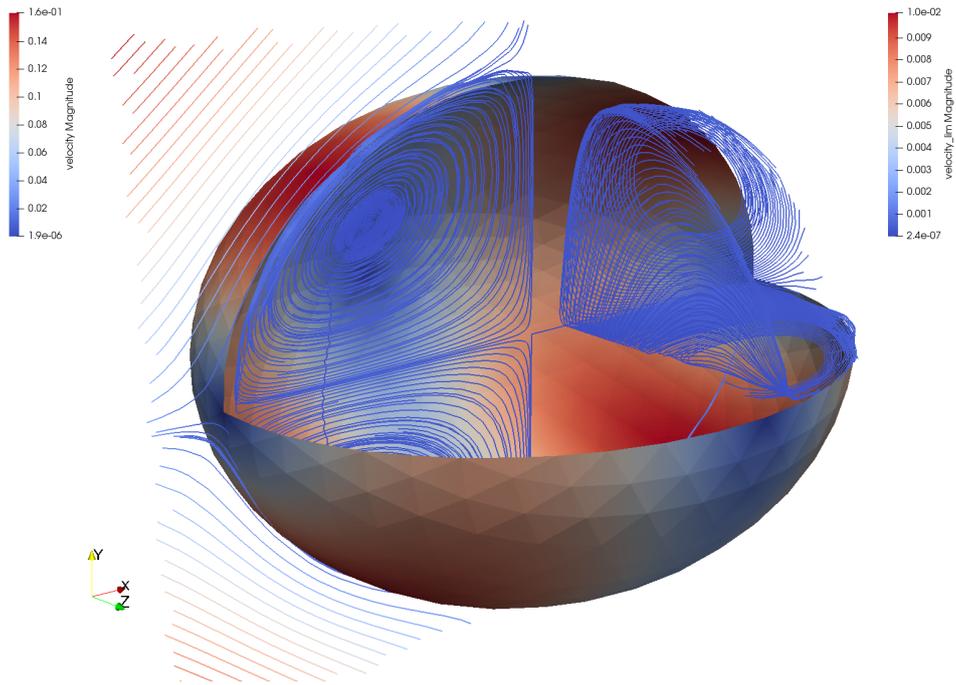


FIGURE 3.23 – Lignes d’écoulement dans le cas d’un écoulement plan : la forme des boucles de recirculation est plus complexe du fait de la présence de points hyperboliques le long de chacun des axes. Sur la partie gauche de la figure, sont représentées les lignes de courant dans le plan  $z = 0$ , sur la partie droite, une des huit boucles de recirculation est représentée.

On mesure l’intensité caractéristique de l’écoulement le long de l’interface en fonction des viscosités de surface pour quelques cas caractéristiques : dans le cas axisymétrique, pour une viscosité de cisaillement pure ( $Bq_d = 0$ ), ainsi que pour des viscosités égales  $\chi = 1$ , dans le cas plan, pour une viscosité de cisaillement pure ou pour une viscosité de dilatation pure. Les résultats sont reportés sur la figure 3.24. On observe que, quelle que soit la situation, pour des viscosités suffisamment importantes, la vitesse caractéristique sur l’interface stationnaire (adimensionnée par la vitesse typique de l’écoulement) suit une loi de puissance de type

$$v_{max} \sim Bq_x^{-1} \quad (3.14)$$

où  $Bq_x$  est la viscosité pertinente pour le cas considéré. Expérimentalement, on pourrait imaginer de déterminer cette vitesse en suivant une particule proche de l’interface, ou en déterminant son temps de circulation.

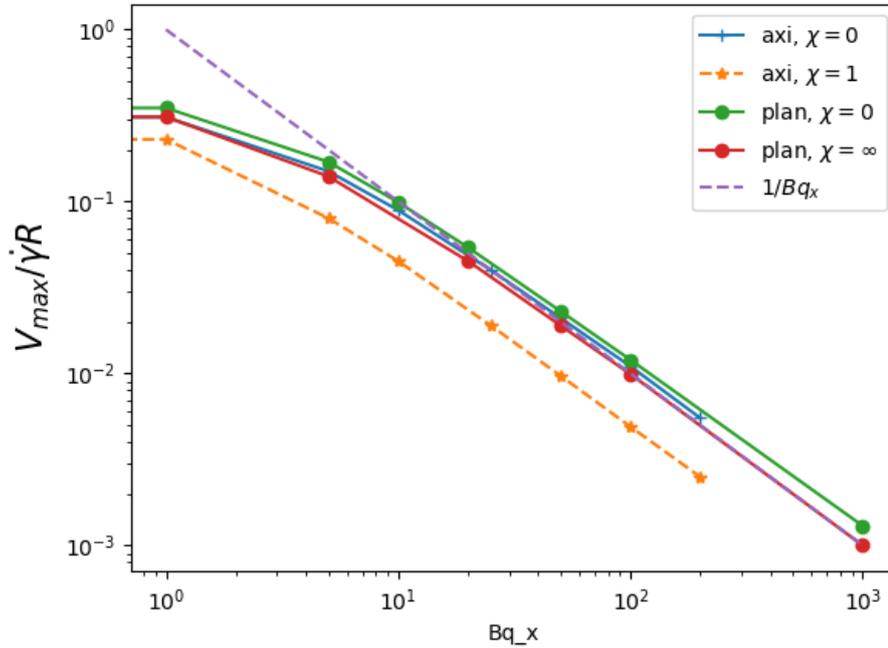


FIGURE 3.24 – Evolution de la vitesse maximale tangente sur l’interface stationnaire en fonction de la viscosité de surface. Différentes situations (plan, axi,  $Bq_s$  dominant,  $Bq_d$  dominant,  $Bq_s \sim Bq_d$ ) sont représentés. Dans tous les cas, on observe une décroissance en  $1/Bq_x$ .

### 3.6 Influence des viscosités interfaciales sur la stabilité de la goutte

Nous nous intéressons ici à l’effet de la viscosité interfaciale sur la stabilité de la goutte. Dans le cas d’un écoulement de cisaillement, il a été montré [Gou+16] que le nombre capillaire critique menant à la rupture dépend du (des) nombre(s) de Boussinesq. Pour  $Bq_s = Bq_d = Bq$ , la viscosité interfaciale stabilise la forme : le nombre capillaire critique passe de 0.44 à  $Bq = 0$  à plus de 2 pour un  $Bq = 2$ . Par ailleurs, les études sur l’influence du contraste de viscosité entre le milieu interne à la goutte et le milieu externe ont montré également une stabilisation de la forme dans un écoulement de cisaillement [Gra82; BL86b; BL86a; BAM06]. Mais, ces études ont également montré que cet effet stabilisant dépend de l’écoulement externe considéré : pour un écoulement de cisaillement simple,  $\lambda > 1$  conduit à une augmentation du capillaire critique, allant même jusqu’à stabiliser la goutte quel que soit le capillaire pour  $\lambda > 4$  [Sto94] si on considère une goutte initialement sphérique. A contrario, pour un écoulement extensionnel pur, le capillaire critique dépend très faiblement de la valeur du contraste de viscosité.

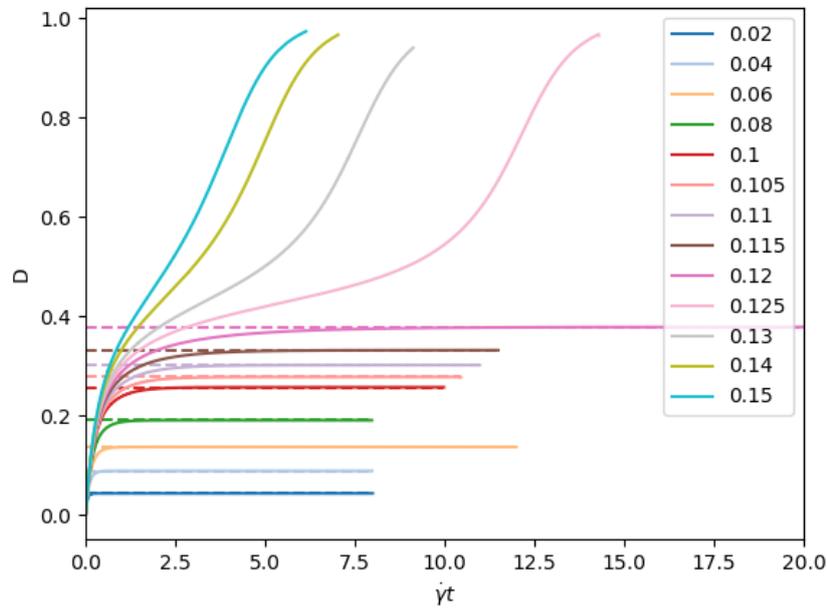


FIGURE 3.25 – Évolution du paramètre de Taylor en fonction du temps adimensionné  $\dot{\gamma}t$ . Lorsqu'un état stationnaire est atteint, on trace également l'asymptote en traits pointillés. On remarque que le temps nécessaire à atteindre l'état stationnaire augmente lorsqu'on se rapproche du capillaire critique. La simulation stable la plus proche du seuil ( $Ca = 0.12$ ) a été poursuivie jusqu'à  $\dot{\gamma}t = 60$  et l'asymptote est déterminée à partir de ce temps de simulation.

L'existence ou non d'une forme stationnaire stable peut se retrouver en observant différentes quantités. Par exemple, on représente sur la figure 3.25 l'évolution du paramètre de Taylor en fonction du temps adimensionné  $gammat$ . On observe assez clairement deux régimes : soit la déformation atteint un plateau stationnaire, soit la goutte se déforme de façon continue. Une interprétation qualitative de l'existence d'une déformation maximale au delà de laquelle une goutte dans un écoulement extensionnel ne peut être stationnaire a été proposée en introduction de ce chapitre, dans la section 3.2.2.

On peut également mesurer comment le paramètre de Taylor et le temps caractéristique de saturation évoluent en fonction du nombre capillaire pour différents contrastes de viscosité interfaciale  $\chi$ , comme représentés sur la figure 3.26. On observe d'une part que l'inclusion d'une viscosité interfaciale de cisaillement (avec  $\chi < 1$ ) a tendance à stabiliser la forme, puisqu'on peut trouver des formes stationnaires pour des nombres capillaires plus élevés. Lorsqu'on se rapproche du nombre capillaire critique, on observe une divergence du temps de saturation adimensionné, qui peut donc être aussi une bonne signature de la transition.

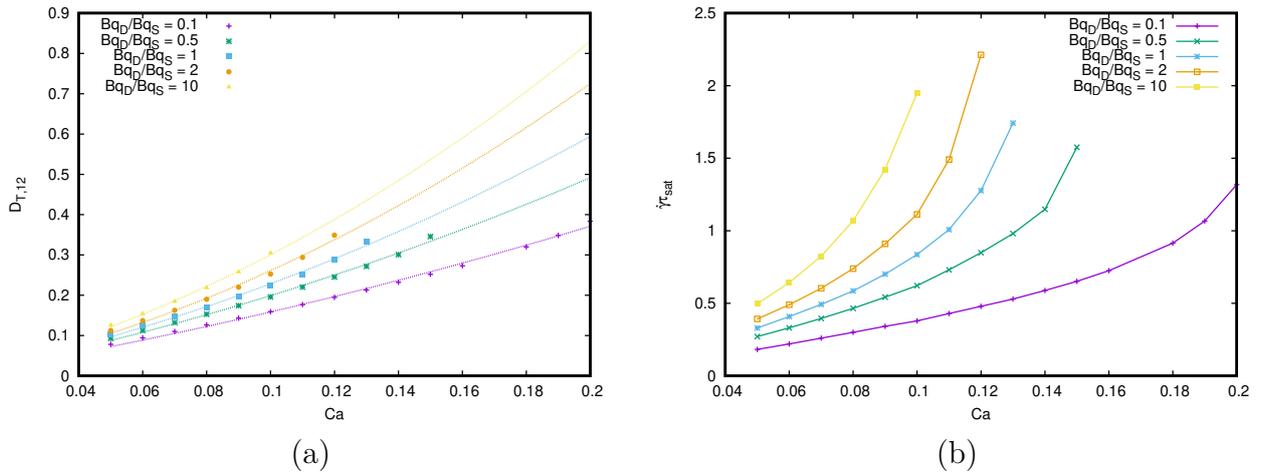


FIGURE 3.26 – Evolution du (a) paramètre de Taylor  $D_{t,\infty}$  et (b) temps caractéristique de déformation  $\tau_{sat}$  pour  $Bq_s = 10$ ,  $\chi$  et  $Ca$  variables.

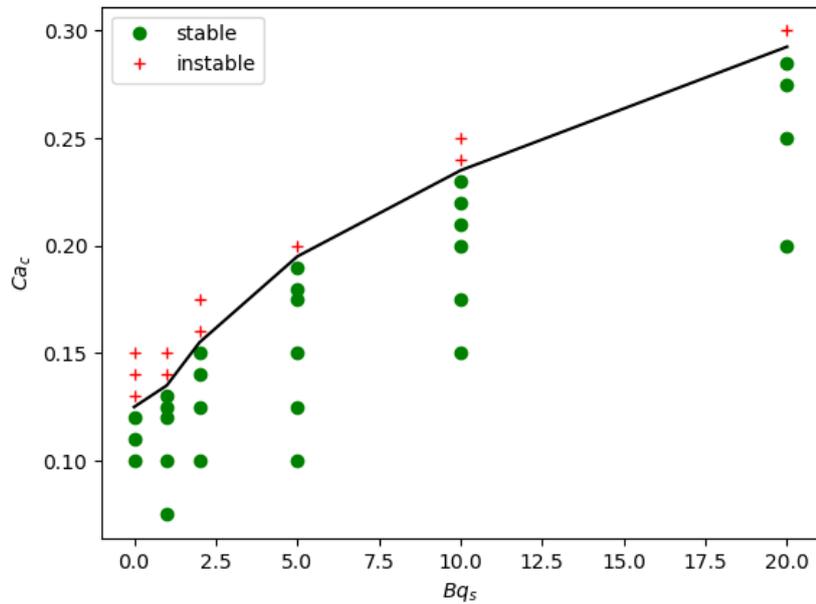


FIGURE 3.27 – Diagramme de stabilité pour une goutte dans un écoulement hyperbolique plan : les points verts correspondent aux simulations stables, les croix rouges aux situations instables. La ligne est un guide visuel pour délimiter la zone de transition.

Nous allons déterminer une estimation plus précise de l'évolution du nombre capillaire critique pour trois cas : influence de la viscosité de cisaillement ( $Bq_d/Bq_s =$

0), influence de la viscosité de dilatation ( $B_{qd}/B_{qs} \rightarrow \infty$ ), influence des deux viscosités ( $B_{qd}/B_{qs} = 1$ ). Pour chacun de ces cas, nous observons l'évolution temporelle du paramètre de Taylor pour différentes valeurs de  $Ca$ . Nous pouvons ainsi classer les situations où la goutte est stable (le paramètre de Taylor atteint une valeur stationnaire) et celles où la goutte est instable (le paramètre de Taylor croît de façon non bornée). Nous recommençons cette étude pour différentes valeurs de  $B_{qs}$  (resp.  $B_{qd}$  ou  $Bq$ ). Nous rassemblons ces résultats dans un "diagramme de stabilité", présenté en figure 3.27. Les points de simulation "stable" et "instable" délimitent deux zones dans le diagramme ( $B_{qs}, Ca$ ), dont nous traçons une approximation de la frontière. Nous superposons à ce diagramme de stabilité les frontières obtenues par la même méthode pour  $B_{qd}$  et  $Bq$ . Nous observons que :

- la viscosité de cisaillement ( $B_{qs}$ ) stabilise notablement la goutte : il faut un nombre capillaire plus élevé pour étirer à l'infini une goutte avec  $B_{qs}$  comparé à une goutte "propre" ;
- la viscosité de dilatation ( $B_{qs}$ ) déstabilise faiblement la goutte : il faut un nombre capillaire moins élevé pour étirer à l'infini une goutte avec  $B_{qd}$  comparé à une goutte "propre". L'effet est cependant bien moins prononcé ;
- lorsque les deux viscosités sont égales ( $Bq$ ), la viscosité de surface stabilise faiblement la goutte : il faut un nombre capillaire légèrement plus élevé pour étirer à l'infini une goutte avec  $Bq$  comparé à une goutte "propre".

Lorsque l'on regarde l'évolution temporelle du paramètre de Taylor en fonction du temps (figure 3.25), il semble que la goutte devient instable dès lors que ce paramètre dépasse un "seuil" qui se situerait autour de 0.4. En nous appuyant sur cette remarque, nous essayons en utilisant la théorie de Flummerfelt de capter l'évolution du nombre capillaire critique en fonction de  $B_{qx}$ . Pour cela, nous supposons que la goutte devient instable dès que son paramètre de Taylor dépasse un seuil que nous fixons à 0.4. Nous inversons alors la relation  $D_T(Ca, B_{qs}, B_{qd})$  donnée par Flummerfelt pour obtenir  $Ca_c(B_{qs}, B_{qd})$ .

Les frontières obtenues sont représentées sur la figure 3.28 et montrent que l'évolution qualitative du système est captée par cette remarque :  $B_{qs}$  a un effet stabilisant car, pour un nombre capillaire donné, il diminue fortement la déformation de la goutte.  $Bq$  et  $B_{qd}$  ont quant à eux un effet faiblement (dé)-stabilisant, car  $Bq$  (resp.  $B_{qd}$ ) diminue (resp. augmente) faiblement la déformation de la goutte pour un nombre capillaire fixé. L'accord est seulement qualitatif car la théorie de Flummerfelt sous-estime le capillaire critique pour une goutte propre.

### 3.7 Conclusion - Perspectives

La présence de contraintes visqueuses à l'interface modifie fortement la dynamique d'une goutte plongée dans un écoulement extensionnel, La viscosité interfaciale de cisaillement contrecarre l'élongation induite par les contraintes

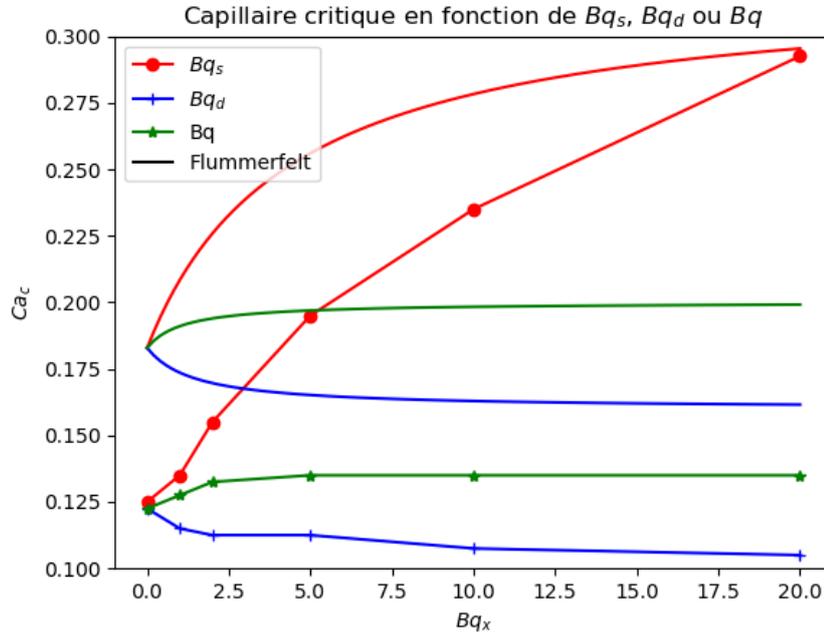


FIGURE 3.28 – Evolution du capillaire critique en fonction de  $Bq_x$  ( $= Bq_s, Bq_d, Bq$ ). Les données numériques sont représentées par des symboles reliés. L'évolution théorique donnée en inversant la relation théorique de Flummerfelt est représentée avec des traits pleins : elle capture qualitativement l'effet des viscosités interfaciales, mais surestime le capillaire critique.

hydrodynamiques, tandis que la viscosité de dilatation l'amplifie. Dans les deux cas, le temps nécessaire pour stabiliser la forme de la goutte est affecté. Les simulations numériques sont en bon accord avec la théorie linéaire de Flummerfelt qui prédit l'évolution de  $D_T$  en fonction de  $Ca$  et  $Bq_s, Bq_d$  : l'accord est généralement seulement qualitatif, ce qui s'explique par le fait que le développement perturbatif de la forme mené par Flummerfelt est arrêté au premier ordre. Néanmoins, quand les déformations sont faibles ( $D_T \approx 0.15-0.2$ , c'est-à-dire un faible  $Ca$  et/ou un grand  $Bq_s$ ), la théorie montre un accord quantitatif avec les simulations.

Dans le cas où les coefficients  $Bq_s$  et  $Bq_d$  sont égaux, une dynamique particulière apparaît : la forme adoptée par la goutte évolue peu à nombre capillaire  $Ca$  fixé, mais le temps nécessaire à l'atteindre évolue linéairement avec la valeur des viscosités surfaciques. Ces résultats sont observés quel que soit le profil de vitesse de l'écoulement extérieur, avec des effets principalement sur les axes orthogonaux à l'axe principal d'étirement.

Étudier l'influence du contraste de viscosité surfacique, défini par  $\chi = \mu_D/\mu_S$ , sur l'évolution d'une goutte visqueuse permet d'élaborer une stratégie pour l'éva-

luation d'une mesure de  $Bq_s$  et  $Bq_d$  en fonction de la déformation à temps long et du temps nécessaire pour atteindre cette déformation.

L'existence d'une forme stationnaire pour une goutte a également été étudiée, et en particulier l'influence des viscosités de surface sur la valeur critique du nombre capillaire au delà de laquelle la goutte est étirée "à l'infini". Nous observons que l'effet des viscosités de surface est faible pour  $\chi \geq 1$ , c'est à dire pour des viscosités de dilatation comparables ou dominantes par rapport à la viscosité de cisaillement. Pour  $\chi = 1$ , les effets visqueux sont faiblement stabilisants, alors que pour  $\chi \rightarrow \infty$ , les effets sont faiblement déstabilisants. Lorsque la viscosité de cisaillement est dominante ( $\chi \ll 1$ ), les effets visqueux sont stabilisants : le capillaire critique double entre une goutte "propre" et  $Bq_s \approx 10$ . Nous avons interprété qualitativement l'effet des différentes viscosités en utilisant la théorie de Flumerfelt.

Une première perspective attractive serait d'étudier la possibilité de remonter à la valeur des viscosités interfaciales en procédant à une analyse inverse comme cela peut être fait pour des capsules par exemple [Lou+15] : en comparant les résultats des simulations numériques aux résultats expérimentaux, et en considérant les valeurs des paramètres  $Bq_s$ ,  $Bq_d$  comme des variables d'ajustement, peut-on retrouver les évolutions observées expérimentalement ? Nous voyons en regardant par exemple la figure 3.10 que, en traçant une ligne horizontale correspondant à une valeur particulière de  $D_T$ , cette ligne est intersectée par une infinité de courbes  $D_T(Bq_s)$  (resp.  $D_T(Bq_d)$ ). Ainsi, pour une même valeur du paramètre de Taylor (qui serait celle observée expérimentalement), il existe généralement une infinité de combinaisons de viscosités interfaciales permettant d'obtenir cette valeur. Il n'est donc pas possible de déterminer les viscosités interfaciales simplement à l'aide de la déformation stationnaire. Par contre, on pourrait imaginer d'utiliser d'une part une mesure du temps caractéristique de la dynamique, que ce soit le temps nécessaire à atteindre la déformation stationnaire ou le temps nécessaire à relaxer jusqu'à la forme sphérique après arrêt de l'écoulement, comme discuté dans la section 3.4. On voit par exemple sur la figure 3.13 que, pour une valeur du temps adimensionné, on trouve différentes valeurs de couple  $(Bq_s, \chi)$  possibles. D'autre part, une mesure de la vitesse caractéristique sur l'interface peut permettre de déterminer la valeur caractéristique de la viscosité. En utilisant cette mesure, on pourrait alors éliminer certains couples  $(Bq_s, \chi)$  ne correspondant pas à ces ordres de grandeurs de viscosité. Néanmoins, à cause de l'argument utilisé pour expliquer la diminution de la vitesse de recirculation (l'interface peut soutenir des contraintes tangentes en incluant la viscosité interfaciale), il serait nécessaire d'inclure les effets Marangoni dans l'étude pour déterminer dans quelle mesure ils modifient ce scaling de la vitesse avant de pouvoir utiliser ce genre de méthode pour faire une analyse inverse. Notons que,

pour des petits nombres capillaires, la forme est quasi-sphérique, donc une analyse perturbative pourrait être applicable pour discriminer l'effet des viscosités interfaciales de celui des effets de gradient de tension de surface.

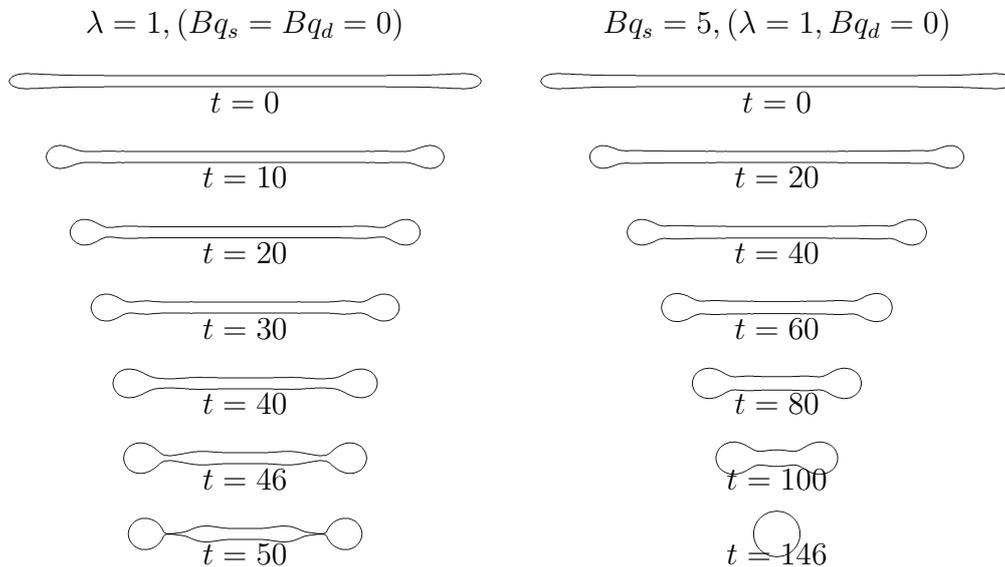


FIGURE 3.29 – Relaxation d'une goutte initialement étirée : l'écoulement externe est nul, et la goutte relaxe par la tension superficielle. On présente ici une coupe de la forme qui est axisymétrique autour de l'axe correspondant à la direction de l'écoulement. Le temps est adimensionné par le temps capillaire  $t_\gamma = \frac{\gamma R_0}{\eta}$ . **A gauche**, une goutte sans surfactants et sans contraste de viscosité  $\lambda = \eta_i/\eta_e$  : un pincement aux extrémités se développe et conduirait à la rupture de la goutte. **A droite**, une goutte avec viscosité surfacique de cisaillement : la goutte relaxe jusqu'à la forme sphérique.

Une seconde perspective est de regarder l'influence des viscosités de surface sur la déstabilisation de gouttes très étirées lorsque l'écoulement est arrêté. En effet, dans cette situation, deux phénomènes peuvent déstabiliser la goutte. D'une part, la partie centrale, qui est qualitativement un cylindre, peut dès lors être sujette à l'instabilité de Rayleigh-Plateau. D'autre part, la relaxation s'effectue par une rétractation des deux pointes qui, suivant les conditions d'écoulement (en particulier le contraste de viscosité  $\lambda = \eta_i/\eta_e$ ), peut conduire au phénomène de "end-pinching" décrit dans la littérature (e.g. [SL89]). Il est intéressant de remarquer que l'augmentation du contraste de viscosité conduit à une stabilisation de la goutte : la rétractation peut s'effectuer complètement (jusqu'à la forme sphérique) sans provoquer de pincement aux extrémités. Nous montrons dans la figure 3.29 que les viscosités interfaciales peuvent jouer un rôle similaire au contraste de viscosité : on compare ici le processus de relaxation pour une goutte "propre" à ( $\lambda = 1, Bq_s = Bq_d = 0$ ) avec la même goutte en prenant en compte

la viscosité de cisaillement ( $\lambda = 1, Bq_s = 5, Bq_d = 0$ ). La forme de départ est obtenue en commençant par étirer une goutte sphérique dans un écoulement au dessus du capillaire critique (ici, on a choisi  $Ca = 0.2$  pour un  $\lambda = 11.3$ ). La forme choisie correspond au temps adimensionnel  $\dot{\gamma}t = 4$ . On observe ainsi que, en l'absence de contraste de viscosité et de viscosité de surface, la goutte ne relaxe pas jusqu'à la forme sphérique. Il se développe un pincement au niveau des pointes, qui conduirait à la rupture de la goutte. Cette rupture à proprement parler ne peut être décrite en l'état par les simulations, il faudrait choisir un critère arbitraire de rupture du maillage à partir d'une distance minimale par exemple. Cela permet néanmoins de décrire les phénomènes précédant cette rupture et de localiser dans l'espace des paramètres les points conduisant à des pincements ou les points conduisant à une relaxation complète.

On observe sur la partie droite de la figure la relaxation de la même goutte en ayant ajouté la viscosité de cisaillement ( $Bq_s = 5$ ) : on remarque que celle-ci stabilise la relaxation de la goutte en empêchant la formation d'un pincement aux extrémités. La viscosité de surface peut donc jouer un rôle similaire au contraste de viscosité (qui stabilise également la forme [SL89]). Il serait intéressant de mener l'étude de la relaxation d'une goutte en comparant plus finement les effets du contraste de viscosité, de la viscosité de cisaillement et de la viscosité de dilatation.

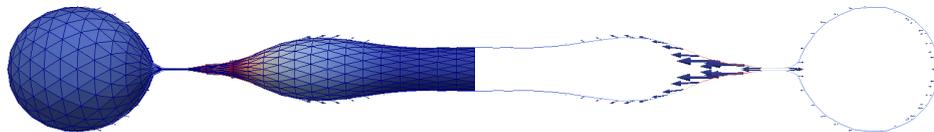


FIGURE 3.30 – Forme à  $t = 50$  pour une goutte "propre" avec un contraste de viscosité égal à 1. Le code couleur représente l'intensité de la vitesse. Sur la partie droite, on a tracé les vitesses sur la coupe du profil. On remarque que le champs de vitesse tend à amplifier le pincement : la goutte est instable.

Enfin, ces résultats sont une première approche pour étudier l'influence de la viscosité de surface sur des objets plus complexes, comme les polymersomes. La membrane d'un polymersome est caractérisée par la conservation locale de sa surface et la conservation du volume contenu, mais également par sa résistance à la flexion et par des effets associés à des contraintes visqueuses dans la membrane. L'étude d'une goutte qui partage quelques propriétés similaires est donc un premier point de comparaison pour une étude future de la dynamique des polymersomes.

## 4 Transition de forme d'une vésicule sous écoulement

Les études menées sur les vésicules s'intéressent généralement au couplage entre les forces hydrodynamiques et la mécanique interfaciale, et plus particulièrement sur la dynamique de la membrane sous écoulement. Par exemple, une vésicule (de la même manière qu'une capsule [Lou+16]) soumise à un écoulement cisailé adopte une dynamique de "tank-treading" [KS05], c'est à dire une forme ellipsoïdale fixe et une rotation de l'interface autour de cette forme figée.

L'une des particularités des vésicules est l'existence de formes d'équilibre thermodynamiques multiples (et localement stables). Ainsi, on peut étudier grâce à ce système physique l'influence des conditions initiales sur la dynamique des vésicules, et sur le rôle du forçage hydrodynamique dans la transition de forme. La plupart des travaux mentionnés précédemment se concentrent sur des vésicules de forme prolata, en particulier dans le régime quasi-sphérique  $v \in [0.9; 1]$ . Le cas particulier d'un écoulement cisailé en proche paroi a été étudié dans [ZSS11], qui considère des formes oblates pour un volume réduit de  $v = 0.65$  pour un taux de cisaillement fixé. Cependant, la transition vers une forme prolata n'a pas été approfondie. Dans le cas d'un écoulement cisailé simple, [SZS14] définit un diagramme de phase d'une vésicule initialement biconcave avec comme paramètres le taux de cisaillement adimensionné et le contraste de viscosité pour deux volumes réduits différents.

Les auteurs établissent que pour un nombre capillaire donné, l'augmentation du contraste de viscosité stabilise la forme biconcave. Pour un volume réduit  $v = 0.65$  et à petits nombres capillaires, la forme biconcave est métastable pour tous les contrastes de viscosité étudiés. Augmenter le nombre capillaire en gardant le contraste de viscosité constant entraîne une transition vers la forme prolata, qui apparaît pour  $\lambda = 1$  à un nombre capillaire compris entre 0.6 et 1.0. A contrario, pour un volume réduit de 0.75, un contraste de viscosité supérieur à une valeur comprise dans l'intervalle  $[3.5; 4]$  est nécessaire pour stabiliser la forme biconcave. [NG04] et [NG05] étudient un diagramme de phase similaire pour un volume réduit de 0.59 avec viscosité de membrane au lieu d'un contraste de viscosité, et établissent que la viscosité de membrane stabilise également la forme oblate.

L'un des phénomènes particulièrement intéressant à étudier est le lien entre la

déformabilité de l'interface de ces objets et leur migration perpendiculaire à la direction de l'écoulement, en particulier à proximité d'une paroi. En effet, ces objets évoluent généralement dans le régime de Stokes, pour lequel les équations régissant les écoulements fluides sont linéaires et réversibles. L'une des conséquences de ces propriétés est qu'un corps rigide et symétrique soumis à un écoulement cisailé en proche paroi ne migre pas loin de la paroi. La déformation de ce corps induit une rupture de la symétrie par rapport à l'écoulement et fait apparaître une vitesse de décollement qui éloigne la particule de la paroi, comme observé expérimentalement pour les gouttes dans [GM62].

Loin de la paroi, la vitesse de migration peut être reliée au stresslet de la particule [ZSS11], et il a été montré que cette vitesse évolue comme  $v_{lift} \sim \dot{\gamma} R_0^3 / h^2$  [SL91]. Cette relation peut être retrouvée soit en approchant la forme de la vésicule par un ellipsoïde [Oll97], soit par expansion autour de la sphère [VG07], [FM13]. Elle a été confirmée numériquement [ZSS11],[FM13] et mesurée expérimentalement en micro-gravité [Cal+08]. Proche de la paroi, la question de la portance hydrodynamique et de son rôle dans le décollement d'une vésicule adhérente a été abordée numériquement et analytiquement en deux [CM99] et trois dimensions [Sei99], [SS01], et également étudiée expérimentalement [ALV02], [AV05], [Lor+00]. L'effet de la gravité a également été étudié numériquement [ZSS11], [SS01], [Meß+09].

## 4.1 Transition de forme d'une vésicule fortement dégonflée

### 4.1.1 Formes d'équilibre d'une vésicule sans écoulement externe

Lors de toutes les simulations numériques réalisées pour cette étude, la forme initiale de la vésicule correspond à la forme d'équilibre thermodynamique de la vésicule au volume réduit considéré. En effet, après avoir été dégonflée à l'aide de différentes techniques comme par exemple l'utilisation de la pression osmotique [Abk02], la vésicule est généralement immergée dans un fluide au repos. Elle atteint alors le minimum d'énergie membranaire global correspondant au volume réduit fixé. C'est cette forme qui sera adoptée comme forme initiale lors de nos simulations. La gamme de volumes réduits étudiée ici étant supérieure à 0.59, les formes prolates et oblates (figure 4.1) sont minima d'énergie de flexion [SBL91]. Pour les déterminer, un algorithme de calcul a été réalisé afin de déterminer ces formes à partir d'une vésicule sphérique.

Le principe de cet algorithme est de diminuer, par une méthode itérative, l'énergie membranaire jusqu'à atteindre un minimum local. Pour cela, l'incompressibilité de surface locale et de volume est traduite par deux coefficients  $\Gamma$  et  $P$ ,

actualisés à chaque itération  $r$ , tels que

$$\mathbf{f}^V(\mathbf{x}) = P\mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad P = (V_0 - V_r)\lambda_V \quad (4.1)$$

$$\mathbf{f}^A(\mathbf{x}) = 2\Gamma H\mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad \Gamma = -(A_0 - A_r)\lambda_A \quad (4.2)$$

$$\mathbf{f}^\kappa(\mathbf{x}) = -\kappa(2\Delta_S H + 2H(H^2 - K))\mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad (4.3)$$

Les valeurs de  $A_0$  et  $V_0$ , aire et volume initiaux, sont imposées de façon à avoir un rayon effectif de la vésicule  $R_0 = (\frac{3V_0}{4\pi})^{1/3} = 1$ , pratique lors du calcul des nombres adimensionnels utilisés pour caractériser les situations étudiées ici.  $V_r$  et  $A_r$  correspondent respectivement au volume et à l'aire de la membrane à l'itération  $r$ . Les coefficients  $\lambda_V$  et  $\lambda_A$  sont des paramètres de l'algorithme et permettent de contrôler l'influence du volume et de l'aire sur l'évolution de la forme. Ces trois contributions étant dépendantes uniquement de la géométrie de la vésicule, notre algorithme cherche à minimiser l'énergie membranaire en adaptant les dimensions de la vésicule. A chaque itération, on modifie la position de chaque noeud selon

$$\mathbf{x}^{r+1} = \mathbf{x}^r + \lambda_X \frac{\mathbf{f}^V(\mathbf{x}) + \mathbf{f}^A(\mathbf{x}) + \mathbf{f}^\kappa(\mathbf{x})}{\max(|\mathbf{f}^V(\mathbf{x}) + \mathbf{f}^A(\mathbf{x}) + \mathbf{f}^\kappa(\mathbf{x})|)} \Delta x \quad (4.4)$$

$\lambda_X$  est un paramètre de l'algorithme qui permet de limiter l'évolution de la position à chaque itération, afin d'assurer la convergence du procédé. La solution est alors atteinte lorsque le deuxième terme de l'équation 4.4 n'évolue plus, ou lorsque la moyenne de la densité de forces membranaires est inférieure à une tolérance donnée.

Les formes obtenues sont validées à l'aide des formes axisymétriques déterminées dans [SBL91] pour le même modèle d'énergie de flexion. A titre indicatif, les formes d'équilibre thermodynamique prolata pour  $v = 0.95$  et oblate pour  $v = 0.59$  obtenues via l'algorithme décrit ci-dessus sont illustrées figure 4.1. Le type de forme est choisi en allongeant légèrement la sphère initiale soit dans une direction pour la forme prolata, soit dans deux directions pour la forme oblate. Ces formes serviront de point de départ à toutes les simulations numériques évoquées dans la suite du manuscrit.

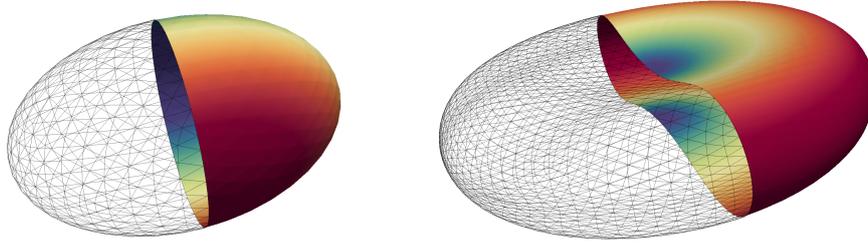


FIGURE 4.1 – **A gauche** : Forme prolata, minimum global de l'énergie de flexion pour  $v = 0.95$ . **A droite** : Forme oblate, minimum global de l'énergie de flexion pour  $v = 0.59$ .

### 4.1.2 Transition de forme d'une vésicule fortement dégonflée

Cette étude porte sur la co-existence des formes oblate et prolata dans la gamme de volumes réduits considérés et sur l'influence des contraintes hydrodynamiques sur les conditions d'existence de ces formes. En effet, les sollicitations liées à l'écoulement externe varient en fonction des conditions limites de celui-ci. A proximité d'une paroi, on voit par exemple à travers les fonctions de Green associées l'ajout de contributions supplémentaires à celle d'un écoulement libre [Bla71]. L'intensité de l'écoulement, ici caractérisée par le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour un écoulement cisailé, joue également un rôle dans la dynamique d'une vésicule [Kra+96]. Il est donc nécessaire d'étudier ces influences sur l'existence des différentes familles de formes et le passage de l'une à l'autre.

Avant d'étudier l'influence de la forme de départ sur la dynamique de la vésicule, nous caractérisons la zone pour laquelle deux solutions possibles aux temps longs peuvent co-exister. Pour cela, nous plaçons une vésicule oblate à une distance  $h = 1.1R_0$  de la paroi (de la même manière qu'illustré figure 4.11), et nous observons son évolution pour différents nombres capillaires.

En première approche pour étudier l'évolution de la forme des vésicules, nous utiliserons  $L_i$  les longueurs des axes de l'ellipsoïde de même tenseur d'inertie que la vésicule. Ces longueurs, adimensionnées par  $R_0$ , permettent une estimation des dimensions réelles de la vésicule, dès lors que la forme est proche d'un ellipsoïde. Notamment, la forme prolata correspond à la relation  $L_1 > L_2 = L_3$  et la forme oblate à  $L_1 = L_2 > L_3$ . De plus, la contrainte sur le volume impose  $L_1 L_2 L_3 = R_0^3$  pendant toute la durée de la simulation.

L'évolution des trois axes est décrite figure 4.2 pour deux volumes réduits,  $v = 0.6$  et  $v = 0.635$ , en fonction du nombre capillaire  $Ca$ . La forme initiale lors des simulations étant de type oblate, on retrouve la relation mentionnée ci-dessus à  $\dot{\gamma}t = 0$ . L'évolution des longueurs dépend du nombre capillaire, et on peut

remarquer une valeur de  $Ca$  critique, notée  $Ca_c$ , à partir de laquelle la vésicule adopte une forme prolata, grâce à la relation définie précédemment. Cette valeur semble dépendre du volume réduit ; en effet, la forme oblate est conservée pour  $Ca = 0.75$  dans le cas  $v = 0.6$ , mais pas pour  $v = 0.635$  où la forme prolata apparaît. Pour  $Ca > Ca_c$ , les longueurs  $L_1$ ,  $L_2$  et  $L_3$  sont peu dépendantes de la valeur de  $Ca$  aux temps longs.

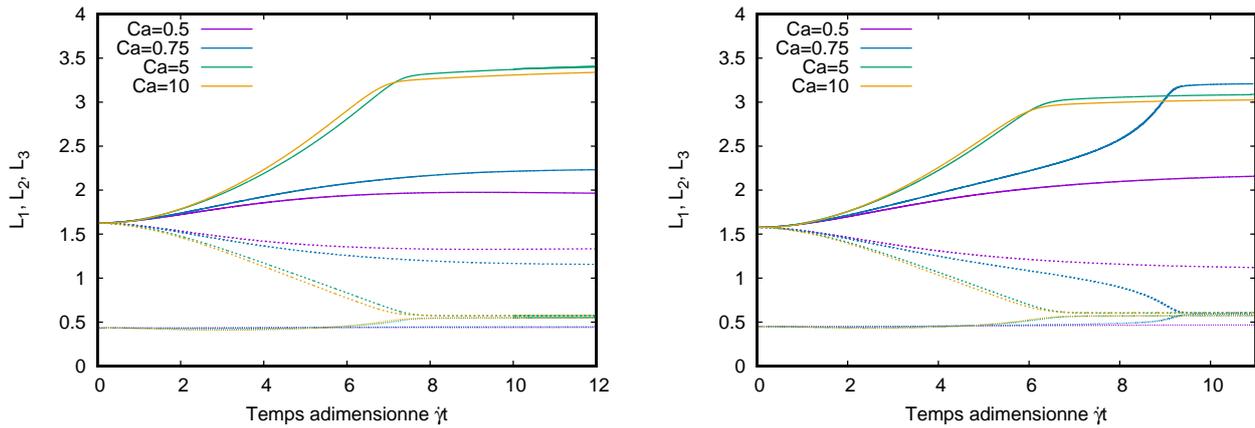


FIGURE 4.2 – Évolution de la longueur des axes principaux de l'ellipsoïde d'inertie équivalent à la vésicule. **A gauche** :  $v = 0.6$ . **A droite** :  $v = 0.635$ . Les lignes continues correspondent à  $L_1$ , les lignes discontinues à  $L_2$  et les lignes pointillées à  $L_3$ .

Nous utiliserons le paramètre  $\beta = (L_1 - 1)(L_2 - 1)(L_3 - 1)$  par la suite comme mesure unique de la forme de la vésicule. Ainsi, le paramètre de forme  $\beta$  nous permet de distinguer la forme prolata ( $\beta > 0$ ) et la forme oblate ( $\beta < 0$ ). La figure 4.3 montre l'évolution de ce paramètre en fonction du temps adimensionné  $\dot{\gamma}t$  pour différents nombres capillaires. Deux régimes sont clairement identifiables : pour de faibles écoulements ( $Ca < Ca_c$ ), une vésicule initialement oblate est légèrement déformée par les contraintes hydrodynamiques, mais reste oblate ( $\beta < 0$ ) pour tous le temps de simulation. En revanche, si les contraintes hydrodynamiques sont suffisantes ( $Ca > Ca_c$ ), cette forme oblate sera étirée par l'écoulement et finira par évoluer vers une forme prolata ( $\beta > 0$ ). Cette transition est illustrée figure 4.4, par une vue de côté et de dessus.

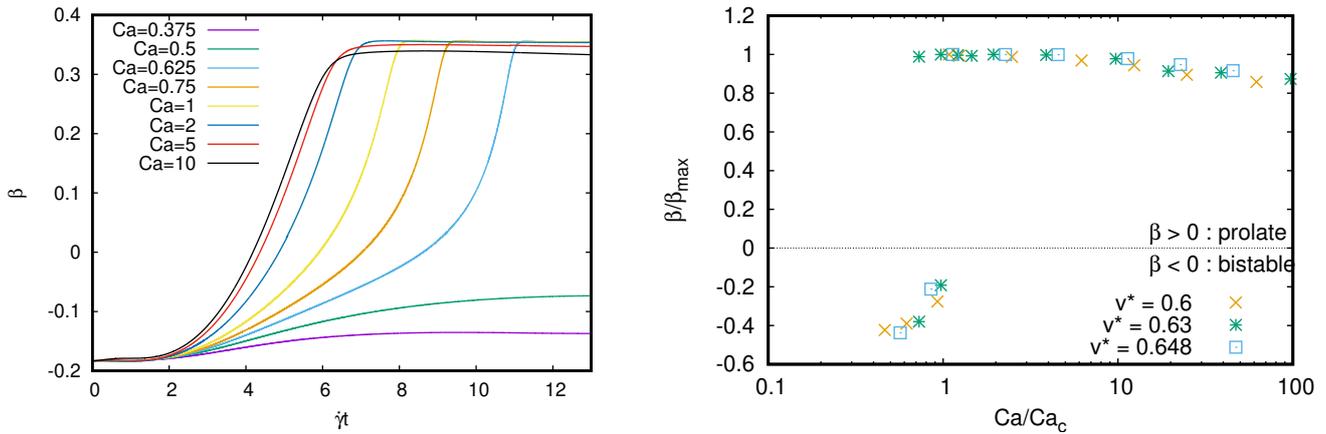


FIGURE 4.3 – **Droite** : Évolution du paramètre de forme en fonction du temps adimensionné, pour différents nombres capillaires et un dégonflement de  $v = 0.635$ . **Gauche** : Évolution du paramètre de forme (normalisé par sa valeur maximum) en fonction du nombre capillaire normalisé par le nombre capillaire critique, pour différents volumes réduits. Tous les points s'alignent sur deux branches de solution, l'une prolate ( $\beta/\beta_{max} \approx 1$ ) et l'autre oblate ( $\beta/\beta_{max} < 0$ ).

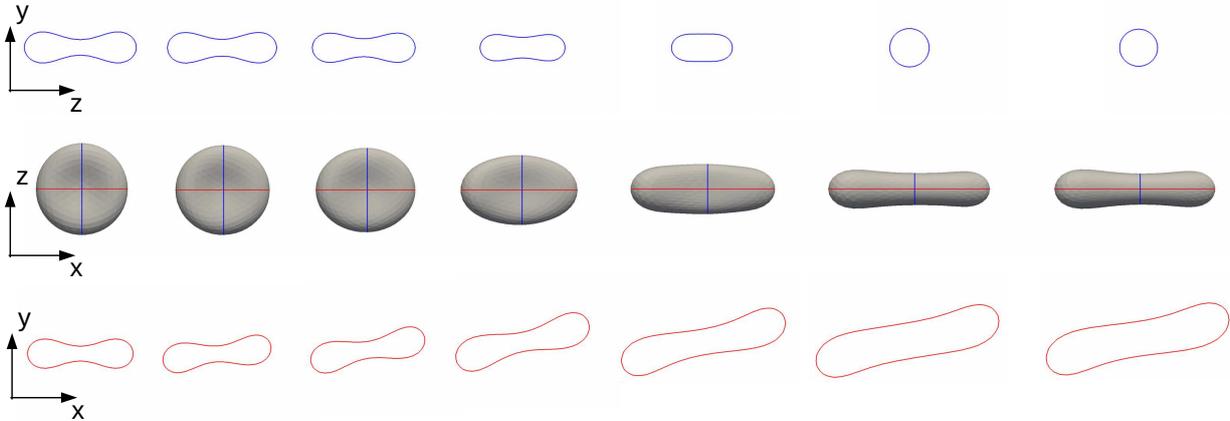


FIGURE 4.4 – Transition de forme oblate vers prolate provoquée par les contraintes hydrodynamiques ( $v = 0.635, Ca = 2$ ). Instantanés dans le plan  $z - y$  (en haut), dans le plan  $x - z$  (au centre) et dans le plan  $x - y$  (en bas) pour différents temps adimensionnés (de gauche à droite  $\dot{\gamma}t = 0; 1; 2; 4; 6; 8; 12$ ).

Une fois l'écoulement mis en place, la membrane est étirée dans le plan de cisaillement. Le volume et la surface étant des invariants, cet étirement est accompagné d'un amincissement de la forme dans la direction  $z$  perpendiculaire à

l'écoulement. La dynamique du profil dans le plan  $z-y$  est intéressante pour comprendre la transition : juste avant la transition, la section caractéristique d'une forme disco-cyte évolue vers une forme oblate convexe (au contraire du disco-cyte). En observant uniquement les forces de flexion dans ce plan, il est clair que la forme convexe telle que celle au temps  $t = 6$  dans la figure n'est pas stable et évoluera vers une forme circulaire. Ceci s'explique par l'action indirecte de l'écoulement dans ce plan perpendiculaire au plan de l'écoulement, à travers la préservation du volume et de la surface. Ainsi, il n'y a aucun écoulement externe qui contre l'effet des forces de flexion dans ce plan, ce qui entraîne une évolution vers un profil circulaire.

### 4.1.3 Caractérisation de la transition de forme

Nous définissons le temps de transition  $t_{tr}$  comme le moment où  $\beta(t_{tr}) = 0$ . Ce temps de transition et le nombre capillaire critique dépendent du volume réduit de la vésicule. Dans la figure 4.5, nous représentons l'évolution du temps de transition en fonction du nombre capillaire. Dans le régime de haut  $Ca$ , ce temps de transition tend vers un plateau  $t_\infty$  correspondant au temps nécessaire pour réorienter la forme en fonction de l'écoulement. En revanche, à petit nombre capillaire, ce temps de transition diverge à un nombre capillaire critique tel que

$$t_{tr} \sim \frac{1}{\sqrt{Ca - Ca_c}} \quad (4.5)$$

Cette divergence est caractéristique d'une bifurcation noeud-col. Pour comprendre l'intérêt d'une telle dépendance, il est nécessaire de modéliser notre système comme un système dynamique continu de variables d'état  $\mathbf{X}(t)$ , dont l'évolution est décrite par une équation différentielle du premier ordre, et ne dépend que du temps et des conditions initiales

$$\mathbf{X}'(t) = f(\mathbf{X}(t), t) \quad (4.6)$$

La fonction  $f$  dépend de paramètres de contrôle, qui maîtrisent l'évolution du système. Pour certaines valeurs critiques de ces paramètres de contrôle, la solution de l'équation 4.6 change qualitativement : on parle alors de bifurcation. Il est alors nécessaire, pour étudier la dynamique d'un système, de trouver les points d'équilibre de ce système et d'étudier leur stabilité. En faisant varier les paramètres de contrôle du système, on peut observer l'évolution des points d'équilibre, l'évolution de leur stabilité et les bifurcations qui apparaissent.

Pour simplifier, nous considérons ici le cas d'un système décrit par une seule variable d'état  $x$ . Dans le cas d'une bifurcation noeud-col, l'évolution du système est décrite par une équation différentielle de la forme

$$x'(t) = f(x(t)) = A + Bx^2(t) \quad (4.7)$$

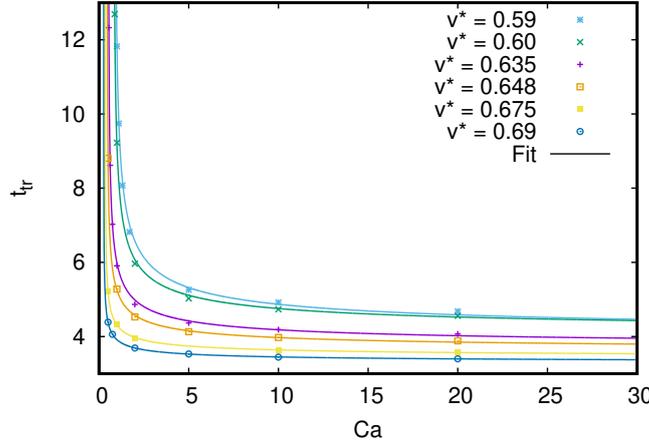


FIGURE 4.5 – Évolution du temps de transition en fonction du nombre capillaire pour différents volumes réduits. Les symboles correspondent aux points simulés, les lignes continues correspondent au fit numérique par  $1/\sqrt{Ca - Ca_c} + t_\infty$ .

avec  $A$  et  $B$  les paramètres de contrôle du système considéré. En supposant  $B > 0$  (on parlera de bifurcation sous-critique) et en normalisant la variable d'état  $x \rightarrow x/B$ , l'équation devient :

$$\frac{x'(t)}{B} = A + B \frac{1}{B^2} x^2(t) \Leftrightarrow x'(t) = AB + x^2(t) \Leftrightarrow x'(t) = r + x^2(t) \quad (4.8)$$

Pour cette équation, et pour  $r > 0$ , il n'existe pas de solutions stationnaires réelles. Par contre, il existe deux points d'équilibre pour  $r < 0$ , qui sont les racines de l'équation  $r + x^2(t) = 0$ , c'est à dire :  $x = \pm\sqrt{-r}$

Soit  $x^*$  l'un de ces deux points ; on peut alors écrire  $f(x^*) = 0$ . Afin d'étudier sa stabilité, on introduit une petite perturbation  $u(t)$ . Un développement limité à l'ordre 1 de cette équation autour du point d'équilibre donne

$$x(t) = x^* + u(t) \quad (4.9)$$

$$x'(t) = u'(t) = f(x^* + u(t)) = r + (\pm\sqrt{-r} + u(t))^2 \quad (4.10)$$

$$= r - r \pm 2\sqrt{-r}u(t) + o(u^2(t)) = \pm 2\sqrt{-r}u(t) \quad (4.11)$$

Ainsi, au premier ordre en la perturbation, le système se comporte selon la relation  $u'(t) = \pm 2\sqrt{-r}u(t)$ . La forme de la solution de cette équation différentielle est alors connue comme  $u(t) = u(0)e^{\pm 2\sqrt{-r}t}$ .

Ainsi, pour la branche négative ( $x^* = -\sqrt{-r}$ ), une perturbation relaxe vers zéro exponentiellement vite, donc le système retourne vers l'équilibre  $x^*$ , il est dit stable. A contrario, pour la branche positive, ( $x^* = +\sqrt{-r}$ ), une perturbation

croît exponentiellement, donc le système s'éloigne rapidement de l'équilibre, il est dit instable. De plus, le temps caractéristique de relaxation (ou de divergence) de la perturbation est donnée par :  $\tau \sim \frac{1}{\sqrt{-r}}$ . Ainsi, quand on se rapproche de la valeur critique ( $r = 0$ ) du paramètre  $r$  pour laquelle la branche stable et instable collisionnent en zéro, le temps caractéristique présente une divergence en  $\tau \sim \frac{1}{\sqrt{-r}}$ .

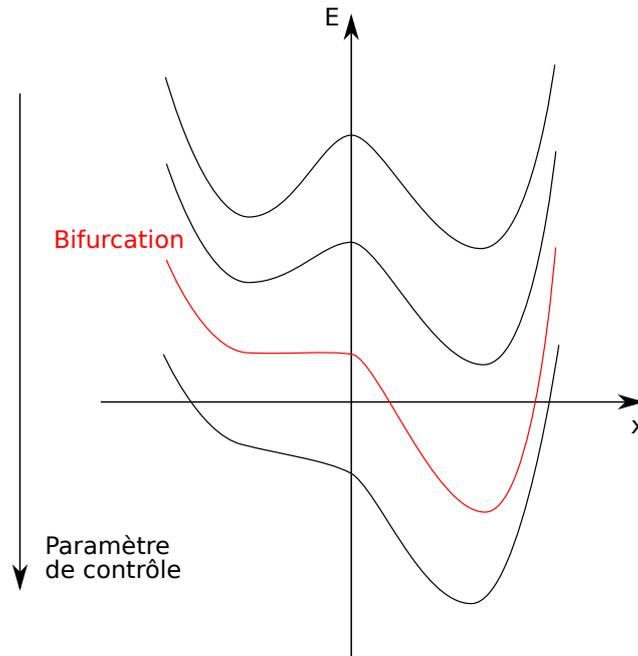


FIGURE 4.6 – Exemple de diagramme d'énergie en fonction d'une variable d'état  $x$  avec bifurcation, évoluant avec un paramètre de contrôle donné. Chaque ligne correspond à une valeur du paramètre de contrôle.

Quelle sont ces deux branches de solution dans notre cas ? Pour le comprendre, on peut raisonner de la façon suivante : pour un volume réduit donné, sans écoulement externe, deux familles de solutions existent, correspondant aux minima locaux de l'énergie de flexion. L'énergie de flexion étant une fonction continue de la déformation, ces minima sont connectés par un maximum local, qui est donc instable. L'évolution de ce maximum local en fonction du paramètre de contrôle correspond à la branche de solution instable. D'un autre côté, l'évolution de la famille oblate en fonction du paramètre de contrôle correspond à la branche stable. La transition a lieu lorsque la branche instable fusionne avec la branche stable oblate. Cette transition correspond à la transition noeud-col, c'est à dire la destruction de la branche oblate par l'écoulement externe imposé.

Nous avons également caractérisé la nature de la transition en fonction du

volume réduit (voir figure 4.7) : pour un nombre capillaire fixé (ici,  $Ca = 0.5$ ), nous traçons l'évolution du temps de transition en fonction du volume réduit. A nouveau, cette évolution est bien décrite par une fonction  $t_{tr} = \frac{1}{\sqrt{\nu - \nu_c}}$ , caractéristique de la bifurcation noeud-col. La nature de la bifurcation est donc la même suivant que l'on fasse varier le nombre capillaire ou le volume réduit, ce qui peut s'interpréter à nouveau en imaginant l'évolution du paysage énergétique accessible à la vésicule lorsque l'on fait varier le paramètre de contrôle ( $\nu$  ou  $Ca$ ).

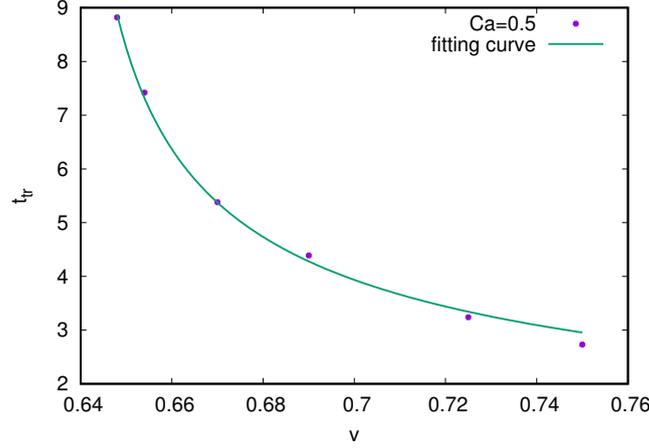


FIGURE 4.7 – Evolution du temps de transition en fonction du volume réduit, pour un nombre capillaire de  $Ca = 0.5$ . Les points correspondent aux points de simulation, et la courbe à un fit par  $t_{tr} = \frac{1}{(\nu - \nu_c)^\alpha}$ , avec les coefficients (déterminés par la régression) :  $\nu_c \approx 0.635$ ,  $\alpha \approx 0.500$ .

Afin de caractériser cette transition plus en détail, nous mesurons également l'amplitude du paramètre de forme en fonction du nombre capillaire (figure 4.3). Une branche prolata apparaît clairement pour tous les nombres capillaires, tandis que la branche de solutions oblates n'existe que pour des écoulements faibles, et disparaît de manière discontinue pour  $Ca = Ca_c$ . Cette transition de l'oblate vers le prolata est caractéristique d'un écoulement cisailé [SZS14]. La valeur du nombre capillaire critique est modérément affectée par la présence d'une paroi : pour un volume réduit de  $\nu = 0.59$ , le nombre capillaire critique dans un écoulement cisailé en proche paroi est de  $Ca_c \approx 0.88$  tandis qu'en écoulement libre,  $Ca_c^{FS} \approx 1.05$ . Il y a donc une diminution d'environ 15% de la valeur du nombre capillaire critique due à la présence de la paroi à  $h = 1.1R_0$ . La réduction du nombre capillaire critique est due à la couche de lubrification qui "retient" la partie inférieure de la vésicule pendant que la partie supérieure s'éloigne de la paroi : il y a donc une élongation supplémentaire de la vésicule, ce qui déclenche la transition pour des nombres capillaires plus faibles.

#### 4.1.4 Évolution de la transition

Enfin, nous abordons l'influence du volume réduit sur la transition. La forme oblate est le minimum global [SBL91] de l'énergie de flexion pour un volume réduit dans la gamme  $v \in [0.592; 0.651]$ . Pour des volumes réduits plus élevés, pour lesquels la forme prolata est le minimum global, les solutions discocytes peuvent exister pour de petits nombres capillaires, indiquant que la famille de formes oblates est métastable même dans de faibles écoulements. Pour un volume réduit donné, le nombre capillaire critique  $Ca_c$  est déterminé par un "fit" numérique tel que  $t_{tr} = 1/\sqrt{Ca - Ca_c} + t_\infty$ . L'évolution de  $Ca_c$  comme fonction du volume réduit est présentée dans la figure 4.8, accompagnée de points de simulation, indiquant la zone dans laquelle peuvent co-exister les deux solutions comme "bi-stable". Les paramètres pour lesquels seules les formes prolates existent (quelles que soient les conditions initiales) sont indiqués comme prolata. Dans la figure 4.8, on peut s'apercevoir de la bonne concordance entre les zones déterminées par simulation numérique et les zones déterminées par le "fit" de la divergence du temps de transition. Nous notons également que la gamme des nombres capillaires compatibles avec des formes oblates se réduit avec l'augmentation du volume réduit : pour  $v = 0.59$ , le nombre capillaire critique est autour de 0.9 tandis que pour  $v = 0.725$ , il est de 0.07 seulement. Pour un volume réduit supérieur à 0.74, il suffit de faibles contraintes hydrodynamiques pour enclencher la transition de forme vers le prolata. Cette observation correspond à l'analyse de stabilité énergétique qui montre que les formes oblates deviennent des minima locaux pour  $v < 0.75$  [Jar+95]. Pour  $v = 0.648$ , nous trouvons un nombre capillaire de  $Ca_c = 0.44$ . Ce nombre capillaire est consistant avec la gamme  $[0.6; 1.0]$  indiquée dans [SZS14] pour des conditions similaires ( $v = 0.65$ ,  $\lambda = 1$ ) car la définition du nombre capillaire est basée sur une échelle de longueur différente : [SZS14] utilise le rayon de la sphère de surface équivalente tandis que nous utilisons le rayon de la sphère de volume équivalent à la vésicule. Avec une même définition du nombre capillaire que [SZS14], nous obtenons un nombre capillaire critique de 0.68.

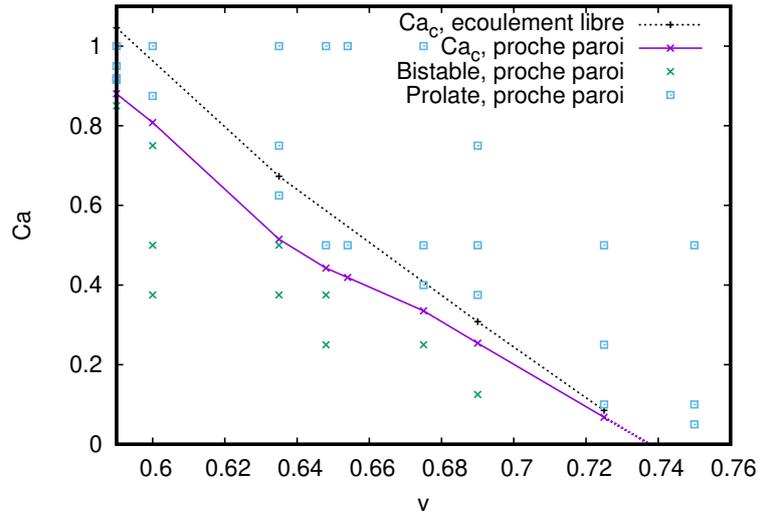


FIGURE 4.8 – Nombre capillaire critique séparant la région bistable de la région prolatae en fonction du volume réduit. Les symboles représentent un extrait des simulations menées dans le régime à faible nombre capillaire. La ligne continue avec symboles représente les données pour une vésicule libérée à proximité d’une paroi à une hauteur  $h/R_0 = 1.1$ , tandis que la ligne pointillée représente les données pour une vésicule dans un écoulement cisailé simple.

## 4.2 Dynamique de décollement sous écoulement cisailé

### 4.2.1 Hypothèse de lubrification et décollement d’une vésicule sous écoulement

Entre la partie inférieure de la vésicule et la paroi, les lignes de courant sont quasiment parallèles du fait de la fine épaisseur de la couche de fluide et l’absence d’instabilités apparentes. Dans de tels cas, il est possible d’utiliser l’hypothèse de lubrification pour simplifier les équations de Stokes, et ainsi déterminer des propriétés importantes pour expliquer la dynamique d’une vésicule en proche paroi. Dans cette section, nous suivons le raisonnement développé par [CM99] pour expliquer le décollement de la vésicule.

Pour simplifier la situation, on peut considérer le cas d’un écoulement parallèle en deux dimensions entre deux parois lisses et parallèles ou formant un angle très petit. Nous supposons que les longueurs caractéristiques de variation des grandeurs liées à l’écoulement, parallèlement aux parois, sont bien supérieures à la distance entre les deux parois.

Dans le cas d’un écoulement en deux dimensions stationnaires, les équations de

Stokes s'écrivent pour chaque composante de la vitesse

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} = \nu \left( \frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \right) \quad (4.12)$$

$$\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial y} = \nu \left( \frac{\partial^2 v_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_y}{\partial y^2} \right) \quad (4.13)$$

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} = 0 \quad (4.14)$$

avec  $p$  la pression hydrodynamique. Dans le cas d'un écoulement de Stokes, on observe expérimentalement que la trajectoire des lignes de courant suit le profil des parois. L'angle du vecteur vitesse au centre de l'écoulement par rapport à la paroi inférieure est de l'ordre de  $\theta$  l'angle entre les deux parois

$$v_y \approx v_x \theta \approx U \theta \quad (4.15)$$

avec  $U$  la vitesse caractéristique de l'écoulement. En considérant l'écoulement entre les deux plans comme un écoulement de Poiseuille, la longueur caractéristique de variation de la vitesse selon  $y$  correspond à l'épaisseur locale  $e(x)$  de moyenne  $e_0$ . On obtient alors les relations

$$\frac{\partial v_x}{\partial y} \approx \frac{U}{e_0} \quad \frac{\partial v_y}{\partial y} \approx \frac{U \theta}{e_0} \quad (4.16)$$

ce qui, en utilisant l'équation 4.14, donne

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} = -\frac{\partial v_y}{\partial y} \approx \frac{U \theta}{e_0} \quad (4.17)$$

et, concernant les dérivées secondes

$$\frac{\partial^2 v_x}{\partial x \partial y} \approx \frac{U \theta}{e_0^2} \quad \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \approx \frac{U}{e_0^2} \quad \frac{\partial^2 v_y}{\partial y^2} \approx \frac{U \theta}{e_0^2} \quad (4.18)$$

La condition d'incompressibilité permet d'établir la relation  $\partial^2 v_x / \partial x^2 = -\partial^2 v_y / \partial x \partial y$ . En prenant  $L$  la longueur caractéristique de l'écoulement, on obtient la relation  $\partial / \partial x \approx 1/L$  et

$$\frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2} = -\frac{\partial^2 v_y}{\partial x \partial y} \approx \frac{U \theta}{e_0 L} \quad \frac{\partial^2 v_y}{\partial x^2} \approx \frac{U \theta}{L^2} \quad (4.19)$$

On remarquera que ces termes sont négligeables comparés aux dérivées secondes par rapport à  $y$ .

Si la condition  $\theta \ll 1$  est vérifiée, alors les équations de Stokes dans le film

de lubrification deviennent

$$\frac{1}{\eta} \frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \quad \frac{\partial p}{\partial y} = 0 \quad \frac{\partial v_x}{\partial x} = -\frac{\partial v_y}{\partial y} \quad (4.20)$$

Ces équations, similaires à celles d'un écoulement parallèle, impliquent plusieurs propriétés du film de lubrification. Tout d'abord, la vitesse selon l'axe  $\vec{x}$  variera si l'épaisseur n'est pas constante, mais beaucoup plus lentement que dans la direction  $\vec{y}$  pour laquelle la longueur caractéristique est  $e_0$ . De plus, la pression dans le fluide varie uniquement dans la direction principale de l'écoulement,  $\vec{x}$  dans le cas présent.

L'hypothèse de lubrification, en considérant la couche de fluide présente entre la partie inférieure de la vésicule et la paroi, permet de donner une première explication au phénomène de décollement qui est observé lorsqu'on impose un écoulement externe.

[Sei99] modélise la vésicule au repos par une sphère dont la partie la plus proche de la paroi est un disque incliné : l'hypothèse de lubrification est appliquée à la couche de fluide entre ce disque et la paroi, avant de relier le phénomène à la dynamique de la vésicule entière. [CM99] considèrent le bas de la vésicule comme une surface plane dont les extrémités sont décrites par des fonctions exponentielles. La variation de la courbure mène à une différence de pression (figure 4.9), à l'origine de la déformation puis du décollement de la vésicule.

Considérons une vésicule proche d'une paroi dans un écoulement stationnaire. Soit  $d(x)$  la distance entre la membrane et la paroi, et  $d'(x)$  sa variation dans le sens de l'écoulement. La vitesse de la membrane  $\mathbf{v}(x, y)$  peut être décrite par une combinaison entre une translation dans le sens de l'écoulement  $\mathbf{v}^T(x, y) = -V\mathbf{x}$  de norme  $V$  et un mouvement de tank-treading  $\mathbf{v}^{TT}(x, y) = -R_0\Omega\mathbf{t}$  avec  $R_0$  le rayon équivalent de la vésicule,  $\Omega$  la vitesse de rotation et  $\mathbf{t} = \mathbf{x} + d'(x)\mathbf{y}$  le vecteur tangent à la membrane dans le plan considéré.

Dans le référentiel de la vésicule en translation plus particulièrement, on a  $v_x(x, 0) = -V$  et  $v_x(x, d(x)) = -R_0\Omega$ . Il est alors possible de déterminer une expression de la vitesse  $v_x(x, y)$  dans le film de lubrification en intégrant 4.20. En appliquant les conditions limites précédentes sur la définition de  $v_x(x, y)$ , la vitesse selon  $x$  est définie par

$$v_x(x, y) = \frac{1}{\eta} \frac{dp}{dx} \left( \frac{y^2}{2} - \frac{yd(x)}{2} \right) + \frac{y}{d(x)} (V - R_0\Omega) - V \quad (4.21)$$

En considérant le débit  $Q$  constant dans le film de lubrification, l'équation 4.21 mène à une équation différentielle qui décrit l'évolution de la pression le long de la membrane. On peut alors définir

$$Q = \int_0^{d(x)} v_x dy = -\frac{1}{\eta} \frac{dp}{dx} \frac{d(x)^3}{12} - \frac{V + R\Omega}{2} d(x) \quad (4.22)$$

$$\frac{dp}{dx} = -\frac{12\eta Q}{d(x)^3} - \frac{V_m \eta}{d(x)^2} \quad (4.23)$$

avec  $V_m = (V + R_0\Omega)/2$  la vitesse moyenne de la membrane dans le film de lubrification. En suivant [CM99], nous considérons que la forme de la membrane à chaque extrémité du film peut être décrite par une forme exponentielle  $d(x) = d_0 e^{x/x_0^\pm}$ . Ici,  $d_0$  est l'épaisseur du film dans sa partie centrale, et  $x_0^\pm$  correspond à la valeur de  $x$  pour laquelle  $d = d_0$  à chaque extrémité (+ correspond à l'avant, - à l'arrière). En considérant  $p_0$  comme la pression dans le fluide environnant et  $p$  comme la pression dans le film de lubrification, on peut écrire  $p(x) = 0$  pour  $d \rightarrow \infty$  ainsi que pour  $d = d_0$  comme approximation suffisante dans notre cas. Le profil de pression est alors décrit aux fronts avant et arrière de la vésicule par

$$p^\pm(x) = -\frac{V_m x_0 \eta}{d^2(x)} \left( 1 - \frac{d_0}{d(x)} \right) \quad (4.24)$$

Ce profil permet d'estimer la valeur maximale locale de la pression telle que

$$p_{max}^\pm = \eta V_m \frac{x_0^\pm}{d_0^2} \quad \text{pour} \quad d(p_{max}) = \frac{3}{2} d_0 \quad (4.25)$$

$x_0$  étant positif à l'avant et négatif à l'arrière de la vésicule, la vésicule subit une surpression à l'avant et une dépression à l'arrière, avec un passage continu de l'une à l'autre comme illustré figure 4.9. Ceci explique le phénomène de décollement observé pour une particule déformable sous écoulement cisailé en proche paroi, qui se déforme alors sous l'effet de ce gradient de pression. Cette déformation brise la symétrie avant-arrière, ce qui permet l'apparition d'une vitesse verticale.

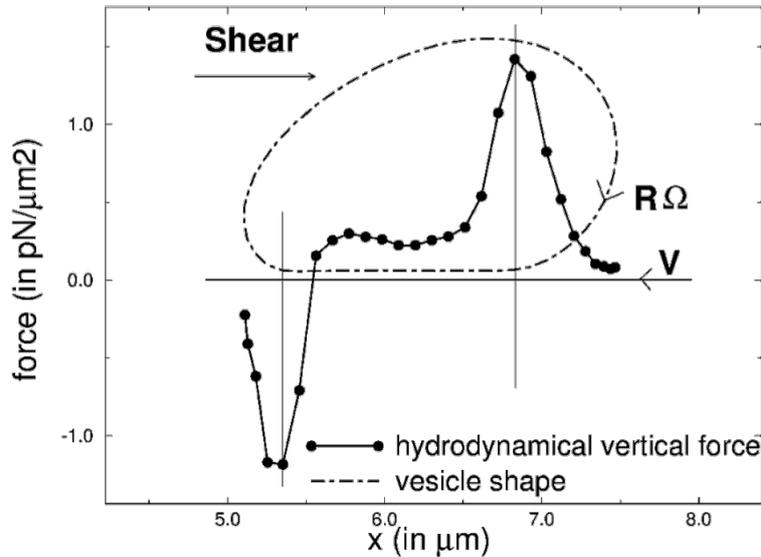


FIGURE 4.9 – Profil de pression verticale dans le film de lubrification. Figure issue de [CM99].

#### 4.2.2 Limites de la simulation en proche paroi

L'intégration d'un champ, vectoriel ou scalaire, sur le maillage de l'interface se fait par l'intermédiaire de points de quadrature, comme vu dans la section 2.4.2. Pour que l'intégration numérique soit précise, il est nécessaire que les forces en présence soient correctement représentées, échantillonnées et que la géométrie soit suffisamment bien définie pour permettre de minimiser les erreurs dues au maillage. Or, dans le cas d'un objet déformable sous écoulement proche d'une paroi, plusieurs sources d'erreurs sont envisageables. On peut imaginer que la longueur caractéristique de variation des forces dans le film de lubrification est très inférieure à la distance entre les points d'intégration, ou encore que les fonctions de Green 2.7 sont difficilement intégrables de la même manière qu'un polynôme. De plus, les intégrales mettant en jeu les fonctions de Green restent quasi-singulières à un certain point, malgré la méthode développée pour surmonter cette limitation. Ces limites sont facilement observables : à partir d'une certaine distance entre la base de l'objet considéré et la paroi, les intégrales de frontière sont incapables de décrire correctement les forces mise en jeu, ce qui peut mener à des dynamiques sans aucun sens physique comme la traversée de la paroi.

Afin d'estimer la limite de validité de notre approche, le cas simple d'une sphère rigide en proche paroi est simulé. Ce cas a été étudié par [GCB67b] et [GCB67a] pour une translation ou une rotation dans un fluide immobile, ainsi

que pour une sphère immobile ou en mouvement dans un écoulement cisailé, le tout à proximité d'une paroi. Pour chaque cas, la force parallèle à la direction de l'écoulement  $F_x$  ainsi que le couple appliqué sur la sphère autour de l'axe  $z$ ,  $M_z$ , sont comparés aux résultats de [GCB67b] et [GCB67a] ; dans le dernier cas, on compare la vitesse de glissement  $U_x$  et la vitesse de rotation autour de l'axe perpendiculaire au plan de l'écoulement  $\Omega_z$ .

L'objectif est de déterminer l'influence du nombre de noeuds, relié à l'ordre  $N$  de raffinement du maillage (correspondant au nombre de fois où le maillage d'origine a été subdivisé), du nombre de points de quadrature utilisés, mais également de la distance à la paroi.

Pour cela, on peut déjà remarquer qu'un solide indéformable dans un écoulement externe est soumis à une vitesse totale :

$$U^p = U^{ext} + (U + \Omega \wedge r)$$

Puisque nous sommes dans un écoulement de Stokes, cette vitesse peut être calculée via les fonctions de Green :

$$u_j^p(x_0) = u^{ext}(x_0) - \frac{1}{8\pi\eta} \int_S f_i(x) G_{ij}(x, x_0) dS(x) + \frac{1}{4\pi} \int_S u_i^p(x) T_{ijk}(x, x_0) n_k(x) dS(x)$$

Pour déterminer la force et le couple appliqués à la sphère rigide, une vitesse  $\mathbf{v}^i$  donnée est imposée à la sphère. La matrice des fonctions de Green  $\mathbf{G}$  est calculée par perturbation, puis le système  $\mathbf{v}^i \mathbf{G} = \mathbf{f}$  est résolu afin de déterminer les forces et couples appliqués sur la sphère.

Les valeurs de la force et du couple appliqués à l'ensemble de la sphère sont comparées aux valeurs tabulées par [GCB67b] et [GCB67a] adimensionnées par :

- la traînée de Stokes  $F_x^* = 6\pi\eta R_0 U_x$
- le couple associé  $M_z^* = 8\pi\eta R_0^2 U_x$

Pour déterminer les vitesses de translation et de rotation de la sphère, lorsqu'elle est libre de se mouvoir dans l'écoulement externe [GCB67b] et [GCB67a], on ajoute à ces étapes le calcul de la matrice de résistance  $\mathbf{R}$  telle que

$$\begin{Bmatrix} \mathbf{F} \\ \mathbf{M} \end{Bmatrix} = \mathbf{R} \begin{Bmatrix} \mathbf{U} \\ \mathbf{\Omega} \end{Bmatrix}$$

On peut ainsi, à partir des contraintes hydrodynamiques externes, calculer les vitesses  $U_x$  et  $\Omega_z$ .

Afin de pouvoir multiplier les points de mesure et donc de comparaison avec la théorie, [Bre61] propose une formule analytique pour trouver le coefficient correcteur  $\lambda$  de la force de Stokes dans le cas d'une sphère poussée vers une

paroi dans un fluide visqueux :

$$F = 6\pi\eta RU\lambda$$

$$\lambda = \frac{4}{3} \sinh(\alpha) \sum_{n=1}^{\infty} \left[ \frac{n(n+1)}{(2n-1)(2n+3)} \left( \frac{2\sinh((2n+1)\alpha) + (2n+1)\sinh(2\alpha)}{4\sinh^2((n+\frac{1}{2})\alpha) - (2n+1)^2\sinh^2(\alpha)} \right) \right]$$

$$\alpha = \cosh^{-1}\left(\frac{h}{R}\right) = \ln \left\{ \frac{h}{R} + \sqrt{\left(\frac{h}{R}\right)^2 - 1} \right\}$$

Ainsi, des positions intermédiaires à celles tabulées pouvaient être simulées et les résultats comparés à la théorie.

Tout d'abord, il est nécessaire de déterminer l'objet géométrique qui définirait le point le plus bas de la sphère, donc la distance effective à la paroi. En effet, entre le nœud le plus bas, le point de quadrature le plus bas et le point géométrique (défini par la fonction de forme) le plus bas, les différences peuvent être suffisamment importantes pour changer drastiquement la valeur de  $\alpha$  et donc de  $\lambda$ . La figure (4.10) présente le calcul de  $\lambda = F_x/F_x^*$  pour un maillage de 320 éléments et différentes définitions de la distance à la paroi. La valeur de  $\lambda$  dépendait fortement de l'objet numérique utilisé, notamment très proche de la paroi avec une valeur de  $\alpha$  évoluant fortement pour une distance inférieure à  $10^{-2}$ . On peut d'ailleurs remarquer qu'à partir de  $h_{min} < 5 \cdot 10^{-2}$ , il devient impossible d'utiliser le nœud le plus bas pour obtenir des résultats cohérents. Cependant, la valeur basée sur le point géométrique le plus bas semble par ailleurs être la plus à même d'être comparée aux valeurs des simulations, étant la plus proche de la théorie. Cependant, trouver ce point a un coût de calcul non négligeable, tandis que les points de quadrature sont des objets numériques très bien définis et utilisés pendant la simulation. Le point de quadrature le plus bas est donc un bon compromis pour évaluer les quantités d'intérêt par la suite.

On peut par ailleurs remarquer qu'à partir d'une certaine hauteur minimale, comprise entre 0.1 et 0.01, la valeur de  $\lambda$  s'écarte de la valeur théorique. Cet écartement est dû à l'incapacité du maillage (ici raffiné deux fois) de saisir le profil de forces de manière suffisamment précise pour estimer correctement la force globale appliquée sur la sphère.

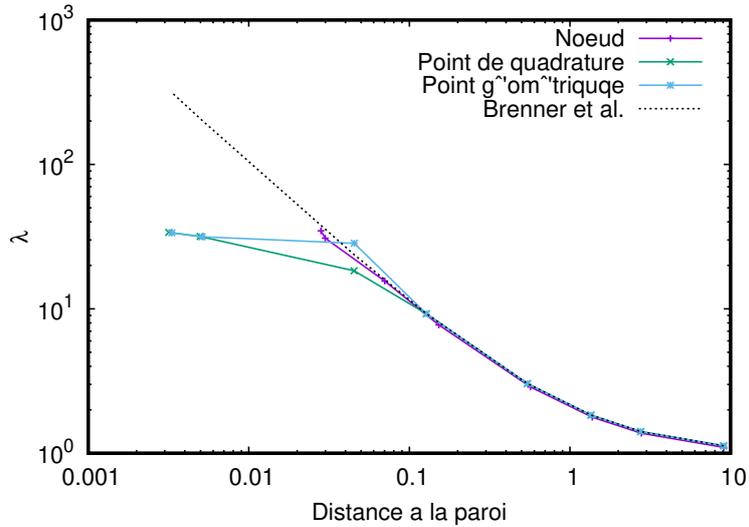


FIGURE 4.10 – Valeur de  $\lambda$  en fonction de la définition du point le plus bas du maillage.

Nous avons par la suite appliqué ces méthodes d'amélioration aux tests exposés précédemment basés sur [GCB67a] qui considèrent une sphère plongée dans un écoulement de Couette. Ceux-ci nous permettent d'obtenir une référence concernant la distance limite entre notre maillage et la paroi selon le raffinement, sans aide "extérieure", avec une exigence d'erreur relative normalisée inférieure à  $10^{-2}$  :

Raffinement	Limite
N = 2	$7 \cdot 10^{-2}$
N = 3	$2 \cdot 10^{-2}$

On retrouve alors les hauteurs à partir desquelles les simulations de vésicules commencent à ne plus fonctionner.

### 4.2.3 Vitesse de décollement sous écoulement de Stokes

Nous étudions ici la manière dont la forme initiale affecte la dynamique de décollement. Nous caractérisons la transition et analysons la dépendance du taux de cisaillement critique au volume réduit.

Afin de valider le code de calcul pour un écoulement en proche paroi, nous simulons une vésicule prolate de dégonflement  $v = 0.95$ , telle que présentée figure 4.1, dans un écoulement cisailé à une distance initiale  $h/R_0 = 1.1$  de la paroi (figure 4.11). Pour qualifier l'intensité des forces hydrodynamiques induites par l'écoulement externe par rapport aux forces de flexion dans la membrane, nous

introduisons le nombre capillaire  $Ca$  tel que

$$Ca = \frac{\eta \dot{\gamma} R_0^3}{\kappa} \quad (4.26)$$

avec  $\dot{\gamma}$  le taux de cisaillement dans l'écoulement. Dans le cas de validation présenté ici,  $Ca = 8$  ce qui nous permet de comparer nos résultats aux données présentées dans [ZSS11].

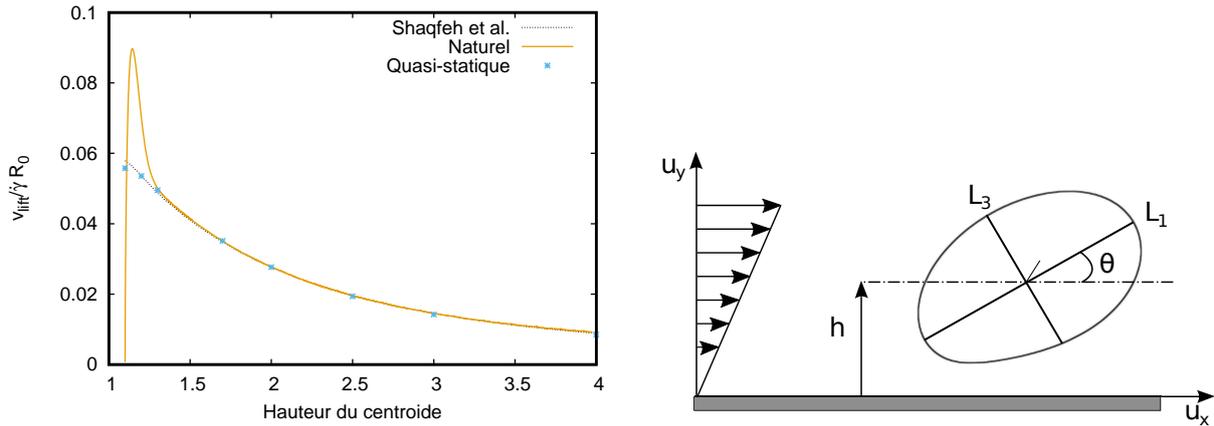


FIGURE 4.11 – **Gauche** : Comparaison de la vitesse de décollement pour  $v = 0.95$  et  $Ca = 8$  avec les résultats présentés dans [ZSS11]. "Naturel" correspond à une vésicule libre de s'éloigner de la paroi, "quasi-statique" correspond à une vésicule bloquée à une distance fixe de la paroi et ayant atteint un état stationnaire. **Droite** : Schéma du système considéré, une vésicule ellipsoïdale placée dans un écoulement cisailé en proche paroi.

[ZSS11] utilise deux méthodes pour déterminer la vitesse de décollement  $v_{lift}$  (ou vitesse orthogonale au plan de la paroi) : la vésicule est relâchée à une distance  $h/R_0 = 1.1$  de la paroi (dynamique "naturelle"), ou alors bloquée à une distance  $h/R_0$  fixe. Dans ce deuxième cas, dénommé "quasi-statique", on étudie la dynamique stationnaire de la vésicule. Ces deux approches donnent des résultats similaires dans la mesure où le temps caractéristique nécessaire à la relaxation d'une perturbation à la surface de la membrane est beaucoup plus petit que le temps caractéristique d'ascension de la vésicule [ZSS11].

La figure 4.11 indique une très bonne concordance entre nos résultats et ceux décrits par les auteurs. Dans le cas d'une évolution naturelle, le pic apparaissant au début de la dynamique de décollement correspond à la réorientation de la vésicule dans le plan de l'écoulement. En effet, l'équilibre entre le couple appliqué par le gradient de pression dans le film de lubrification d'une part, et le couple appliqué par l'écoulement externe sur une vésicule inclinée d'autre part, impose

à la vésicule un angle positif dans le plan de l'écoulement. Ces données nous confortent donc dans la simulation de situations plus complexes comme celles développées dans ce chapitre.

#### 4.2.4 Description du décollement à la paroi

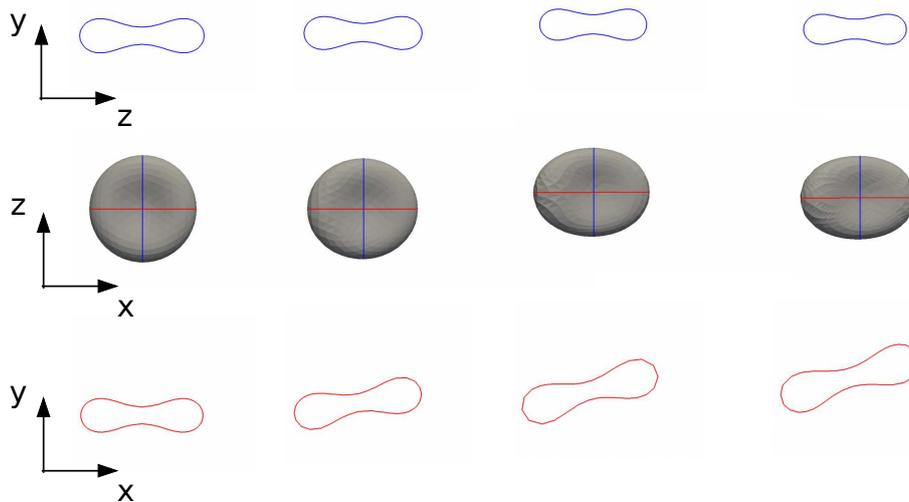


FIGURE 4.12 – Dynamique de décollement d'une vésicule biconcave ( $v = 0.635$ ;  $Ca = 0.375$ ) : instantanés dans le plan  $z - y$  (en haut), dans le plan  $x - z$  (au centre) et dans le plan  $x - y$  (en bas), pour différents temps adimensionnés (de gauche à droite  $\dot{\gamma}t = 0; 2; 5; 10$ ).

Un cas typique simulé est illustré figure 4.12 : une vésicule de forme disco-cyte est placée dans un écoulement cisailé de faible intensité ( $Ca = 0.375$ ). La forme initiale possédant une symétrie avant-arrière, la vitesse de décollement initiale est nulle. La forme de la vésicule s'adapte à l'écoulement en s'étirant dans la direction principale de l'écoulement, tandis que la membrane développe un mouvement de tank-treading. Il y a donc un gradient de pression dans le film de lubrification entre la vésicule et la paroi, la plus grande pression étant localisée à l'avant de la vésicule [CM99; Sei99]. Ceci induit un couple, compensé par le moment appliqué sur la vésicule quand son axe le plus long change son orientation dans l'écoulement, qui mène à une réorientation de la vésicule avec une inclinaison positive comme illustré figure 4.11.

Dans un second temps, la vésicule s'éloigne de la paroi, gardant globalement une forme et une inclinaison constante. Cette déformation mesurée par le paramètre de Taylor  $D_T$  et l'angle d'inclinaison  $\theta$  dépend du nombre capillaire et du volume réduit. Dans un régime d'écoulement à faible intensité (où les formes

oblates sont stables), augmenter le nombre capillaire amplifie la déformation  $D_T$  tandis que l'angle d'inclinaison  $\theta$  diminue (figure 4.13). Pour de plus grands nombres capillaires, l'évolution est inversée :  $D_{xy}$  décroît peu en fonction du nombre capillaire, tandis que  $\theta$  augmente faiblement avec  $Ca$ . En divisant la vitesse de décollement par  $\dot{\gamma}$ , toutes les courbes correspondant à un écoulement de faible intensité se superposent sur une courbe maîtresse  $v_{lift} = v_{lift}(h)$  qui dépend uniquement de la hauteur de la vésicule  $h$ . A une distance suffisante de la paroi, le régime asymptotique est tel que  $v_{lift} \sim h^{-2}$  avec un préfacteur dépendant du stresslet de la particule, comme proposé dans [ZSS11]. Les auteurs montrent que, dans ce régime asymptotique, une vésicule prolata a toujours une vitesse de décollement supérieure à celle d'une vésicule oblate, car le stresslet de la particule est plus important, comme illustré figure 4.13. Cependant, en proche paroi, la situation s'inverse : les vésicules oblates ont une vitesse de décollement plus grande que les formes prolates (environ 50% de plus), comme l'indique la figure 4.14. La proportionnalité de la vitesse de décollement à l'intensité du stresslet (valide loin de la paroi) est donc insuffisante pour décrire la dynamique de décollement d'une vésicule lorsqu'on s'intéresse aux premiers moments de la dynamique. En effet, à proximité de la paroi, la vitesse de décollement est dominée par les effets de lubrification. Pour une vésicule oblate, la surface faisant face à la paroi est plus importante, les effets de lubrification sont donc plus importants sous la vésicule, ce qui se traduit par une vitesse de décollement plus élevée.

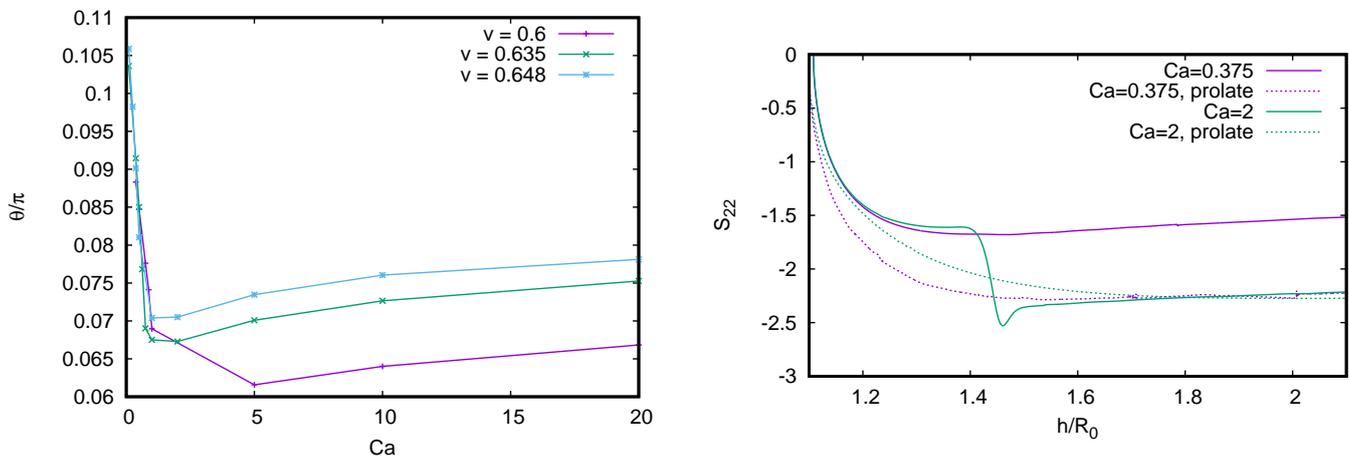


FIGURE 4.13 – **Gauche** : Angle d'inclinaison de la vésicule dans le plan de cisaillement. **Droite** : Valeur du stresslet  $S_{22}$  pour  $v = 0.635$ , différents nombres capillaires et familles de forme de départ.

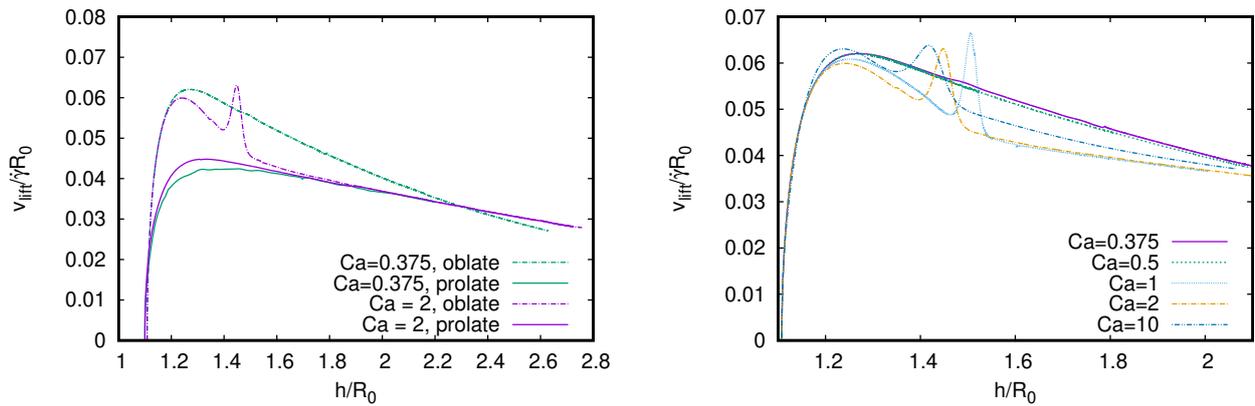


FIGURE 4.14 – **Gauche** : Dynamique de migration d’une vésicule de volume réduit  $v = 0.635$  en fonction de la forme initiale (oblate - lignes pointillées, prolate - lignes continues) et du nombre capillaire. **Droite** : Vitesse de décollement adimensionnée en fonction de la hauteur du centroïde adimensionnée, pour une vésicule de dégonflement  $v = 0.635$  avec une forme initiale oblate. Le nombre capillaire critique pour ce volume réduit est  $\approx 0.52$ .

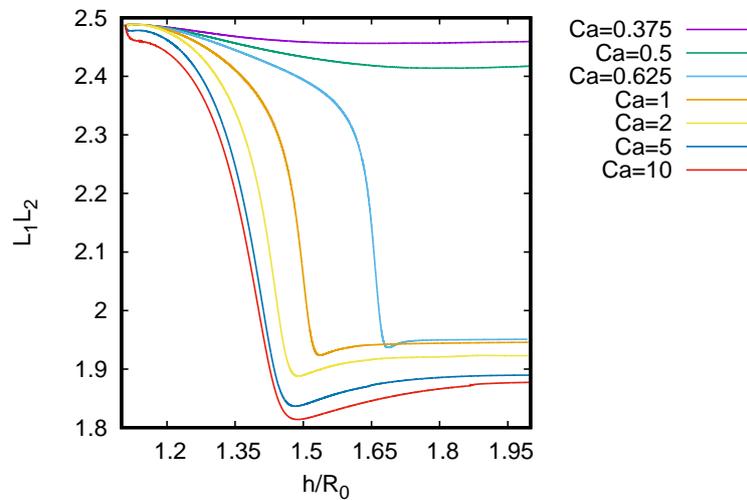


FIGURE 4.15 – Projection de la vésicule dans le plan de la paroi pour différentes valeurs de  $Ca$ .

Lorsque le nombre capillaire augmente encore, la forme oblate initiale est étirée par l’écoulement et tend vers une forme prolate, comme discuté précédemment et illustré figure 4.4. L’étirement de la forme dans le plan de cisaillement est illustré figure 4.15. En estimant l’aire de la projection de la vésicule dans le

plan de la paroi par l'aire d'un rectangle de côtés  $L_1$  et  $L_2$ , on peut avoir une indication de cet affinement. L'aire évolue peu lorsque la vésicule reste oblate, cependant la transition vers une forme prolata fait fortement diminuer la surface face à la paroi, caractéristique d'une forme prolata. Au-delà de la transition, la forme continue à évoluer en fonction de l'intensité de l'écoulement, s'affinant de plus en plus sous l'effet du cisaillement. Dans un tel cas, il est probable que l'hypothèse de lubrification ne soit plus valide, celle-ci impliquant peu de variation de la distance entre la vésicule et la paroi dans la direction perpendiculaire à l'écoulement.

Cette transition de forme laisse également une trace dans la vitesse de décollement, qui présente une augmentation locale comme illustré figure 4.14. Après la transition, la vitesse de décollement est identique quelle que soit la forme initiale (figure 4.14, pour  $Ca = 2$ ).

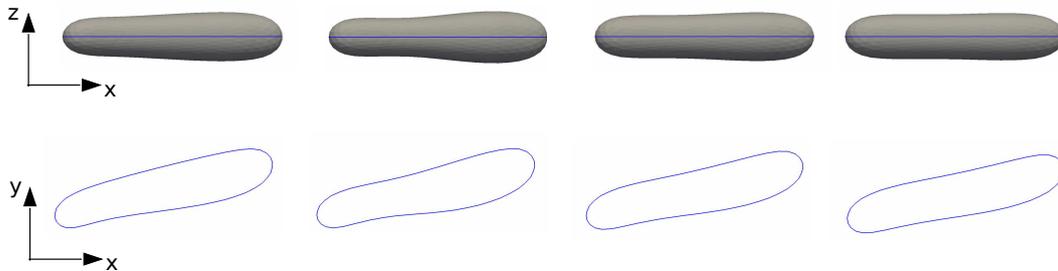


FIGURE 4.16 – Forme asymétrique d'une vésicule prolata ( $Ca = 10$ ). Instantanés dans le plan  $x - z$  (en haut) et dans le plan  $x - y$  (en bas), correspondant aux hauteurs adimensionnées  $\frac{h}{R_0} = 1.6; 2.3; 3.5; 5$ .

#### 4.2.5 Évolution de la forme en proche paroi dans un écoulement de forte intensité

Pour conclure, pour de grands nombres capillaires ( $Ca \geq 10$ ), la migration depuis la paroi est accompagnée par l'apparition de formes asymétriques transitoires, comme illustré figure 4.17. Suffisamment loin de la paroi, l'asymétrie disparaît et la forme converge vers celle correspondant à l'écoulement libre. En augmentant encore le nombre capillaire, cette asymétrie est d'autant plus prononcée, ce qui pourrait mener à la formation d'une forme perlée transitoire, comme l'indiquent des simulations préliminaires à très grand nombre capillaire ( $Ca \approx 50$ ). Ces formes rappellent les formes PB obtenues dans [FM12] pour une vésicule dégonflée ( $v \approx 0.6$ ) dans un écoulement cisailé avec un contraste de viscosité  $\lambda < 1.0$ . A noter, l'apparence de cette forme transitoire n'est pas liée à la transition oblate-prolate, étant observée indépendamment de la forme de départ qu'elle soit oblate ou prolata. Elle est due à l'asymétrie des efforts hydro-

dynamiques appliqués à la vésicule : la présence de la paroi conduit à des efforts hydrodynamiques supplémentaires dans la couche de lubrification, qui ont tendance à "coller" la vésicule près de la paroi, alors que la partie supérieure est soulevée et étirée par l'écoulement.

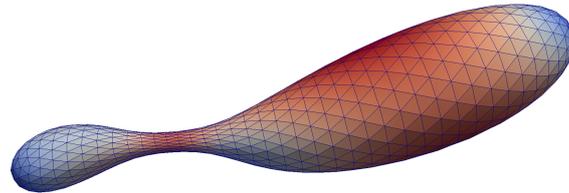


FIGURE 4.17 – Forme perlée transitoire due à la présence de la paroi, obtenue pour une vésicule dégonflée sans contraste de viscosité ( $\lambda = 1$ ) sous écoulement cisailé de forte intensité ( $Ca = 50$ ).

### 4.3 Conclusion

Nous avons étudié comment les contraintes hydrodynamiques peuvent déclencher la transition d'une forme oblate vers une forme prolata. Nous avons déterminé un diagramme déterminant dans quelle région du plan  $(v, Ca)$  les solutions bistables existent. Pour une vésicule quasi-sphérique, aucune région bistable n'a été identifiée ; pour des vésicules plus dégonflées, cette région existe pour des écoulements de faible intensité avec une limite haute qui augmente avec le dégonflement. Pour des vésicules dégonflées ( $v \sim 0.6$ ), le contraste de viscosité [SZS14] ou la viscosité membranaire [NG04 ; NG05] augmentent le nombre capillaire critique, stabilisant la forme oblate. Ce phénomène est par exemple attendu dans le cas d'un polymersome, dont la composition de la membrane implique la prise en compte de contraintes visqueuses comme évoqué dans l'introduction. La présence d'une paroi mène à une légère diminution du nombre capillaire critique, due aux contraintes supplémentaires. Nous avons ensuite étudié la dynamique de décollement d'une vésicule oblate dans un écoulement de faible taux de cisaillement et montré que, contrairement aux prédictions en champ lointain, une vésicule oblate en proche paroi a une vitesse de décollement supérieure à celle d'une vésicule prolata de même volume réduit. Enfin, nous avons déterminé que, pour de grands nombres capillaires, les contraintes hydrodynamiques liées à la paroi peuvent mener à des formes asymétriques, quelle que soit la forme initiale de la vésicule.

# 5 Perspectives : dynamique d'un polymersome sous écoulement

## 5.1 Introduction

De nouvelles formes de gouttes complexes émergent régulièrement avec les avancées technologiques et scientifiques réalisées. Dans le cas d'une capsule, la membrane qui entoure la goutte est constituée de polymères réticulés ; les liposomes sont constitués de phospholipides amphiphiles et auto-organisés. Chacune de ces structures possède des propriétés physiques particulières, comme nous avons pu le voir au cours des précédents chapitres.

Le polymersome est composé d'une membrane de co-polymères multiblocs (PBO-b-PEO ou PEE-b-PEO par exemple) composés d'une partie hydrophile et d'une partie hydrophobe. Cette membrane peut être bi-couche dans le cas de polymères di-blocs ou mono-couche dans le cas de polymères tri-blocs. En effet, c'est leur caractéristique amphiphile qui, par auto-organisation dans une solution aqueuse, les conduit à former une membrane fermée. Cette membrane a des propriétés physiques communes à la vésicule. Elle présente une résistance à la flexion et à l'étirement, ainsi qu'une conservation locale de la surface par un raisonnement similaire à celui fait pour une vésicule. On peut donc définir de la même manière l'interface du polymersome comme un fluide incompressible. La principale caractéristique et source d'intérêt de la membrane d'un polymersome est la résistance qu'elle manifeste lorsqu'un gradient de vitesse surfacique lui est imposé. Pour estimer l'importance de ce phénomène, on rappelle la définition de la longueur de Saffman-Delbrück  $L_{SD}$  qui représente la proportion entre les phénomènes de viscosité surfacique et ceux induits par le fluide environnant :

$$L_{SD} = \frac{\mu_S}{\eta} \sim R_0 \frac{f_\mu}{f_\eta} \quad (5.1)$$

avec  $\mu_S$  la viscosité surfacique de cisaillement ( $f_\mu$  les forces associées) et  $\eta$  la viscosité du fluide environnant ( $f_\eta$  les forces associées). Comparée à une longueur caractéristique de l'objet considéré, le rayon effectif  $R_0 \sim 10 \mu m$  dans notre cas, cette longueur permet d'estimer l'importance des effets de viscosité surfacique sur la dynamique globale. Pour un polymersome et en considérant une solution aqueuse, cette longueur est de plusieurs ordres de grandeurs au-dessus de la taille typique utilisée dans cette étude. Il est donc nécessaire de prendre en consi-

dération la viscosité de cisaillement de la membrane afin de décrire au mieux la dynamique de celle-ci.

Nous présentons dans cette partie les premiers résultats d'une étude sur l'influence de la viscosité surfacique de cisaillement dans le mouvement du polymersome et son évolution. En particulier, nous aborderons les caractéristiques des différents types de mouvements adoptés par la particule ainsi que l'évolution de sa forme lorsqu'il est fortement dégonflé par rapport à la sphère. Ces résultats seront comparés à ceux obtenus pour une vésicule de même dégonflement, avec ou sans contraste de viscosité entre le fluide interne et externe.

La dynamique d'un polymersome sous écoulement a peu été abordée au cours des dernières années. La plupart des études concernant la viscosité d'une goutte complexe concernent soit les gouttes avec viscosités interfaciales [Flu80a], [Poz94], [Gou+16], soit les vésicules avec un contraste de viscosité entre la phase interne et externe [LTV07], [KFM09], [DKS09]. Ces derniers illustrent l'importance de prendre en compte les propriétés du fluide interne pour comprendre la dynamique de l'objet immergé. Par exemple, le diagramme de phase de [DKS09] détaille les différents mouvements de la vésicule faiblement dégonflée en fonction de l'écoulement externe et du contraste de viscosité, faisant écho aux travaux de [KS82]. Concernant l'influence de la viscosité membranaire d'une vésicule, l'étude de [Hon+13], montre qu'elle influe les lignes d'écoulement autour d'une vésicule adhérente sur une paroi et soumise à un écoulement de cisaillement simple. Les auteurs utilisent ensuite cette information pour *mesurer* cette viscosité.

Les travaux de [NG04], [NG05] et [NG07] donnent une première approche des problématiques de viscosité membranaire pour un polymersome. Ces études ont été réalisées à l'aide d'un modèle MPCD (Dynamique de collision multi-particules [Lam+01 ; Rip+04]) qui représente un comportement proche de la dynamique moléculaire dans un fluide. Le fluide environnant est alors représenté par des particules se mouvant dans une boîte de dimensions définies. Leur mouvement est déterminé par une alternance de mouvement ballistique et de collisions entraînant la modification de la trajectoire et de la vitesse de chaque particule. La membrane est modélisée par un maillage triangulaire surfacique composé de points connectés par des liens possédant un degré de liberté en rotation. Lorsque ces liens basculent sur selon l'une ou l'autre des diagonales des triangles adjacents, la mobilité de la surface est affectée. Ce phénomène permet aux auteurs de modéliser la viscosité de membrane  $\mu_s$  qui augmente lorsque la fréquence de basculement des liens diminue. La correspondance entre ces deux phénomènes se fait alors quantitativement par la simulation d'une membrane plane dans un écoulement de Poiseuille plan : il faut passer par une étape de calibration de la viscosité (le paramètre physique) en fonction de la probabilité de "bond-flip" (le paramètre numérique). L'interaction entre le fluide environnant et la membrane

se fait par l'inclusion des points du maillage surfacique dans le modèle MPCD, mais également en prenant en compte le choc élastique des particules fluides sur la membrane. Ainsi, cette modélisation permet par exemple l'inclusion des effets de fluctuation thermique  $k_B T$ .

Les simulations réalisées font apparaître les mouvements de *tank-treading* ou de *tumbling* ainsi que les transitions de forme similaires à ceux observés pour un contraste de viscosité différent de l'unité. Ceci suggère notamment une similitude entre les effets de la viscosité du fluide interne et ceux de la viscosité de membrane. Notre approche revêt un caractère plutôt basé sur les équations de la mécanique des milieux continus qui nous permet une comparaison plus naturelle avec les données de la littérature pour des gouttes ou des vésicules.

## 5.2 Modèle de Keller-Skalak

Les mouvements de *tank-treading* et de *tumbling* sont observés pour différents objets déformables immergés dans un écoulement cisailé ou linéaire. Ainsi, les travaux sur la dynamique d'un globule rouge permettent de mieux comprendre et modéliser ces dynamiques et le passage de l'une à l'autre en fonction des paramètres du système. La composition de la membrane d'un globule rouge étant complexe, il est nécessaire de simplifier la description de cette membrane dans une première approche. Dans cette optique, les travaux de Jeffery (1922) sur la rotation de particules ellipsoïdales dans un écoulement visqueux ont permis une première comparaison avec les phénomènes observés avec un globule rouge immergé dans un écoulement (Goldsmith et Mason 1967)(Brenner et Bungay 1971). L'étude de gouttes (Fischer Stöhr-Lissen Schmid-Schönbein 1978) ainsi que de capsules élastiques ou visco-élastiques (A concentrated suspension model for the couette rheology of blood, Brennen 1975)(Barthès-Biesel 1981) plongées dans un écoulement ont permis d'analyser le mouvement stationnaire de ces particules dans la limite de petites déformations par rapport à la sphère.

Les travaux de [KS82] font suite aux observations de (Keller 1979a) et Keller et Skalak (1980) qui détaillent l'influence de la vitesse surfacique d'un ellipsoïde sur les dynamiques stationnaires et de rotation de celui-ci lorsqu'il est plongé dans un écoulement cisailé. Un modèle est établi dans ce contexte afin d'expliquer l'influence des paramètres géométriques, de l'écoulement et des fluides mis en jeu sur l'évolution de la dynamique de l'ellipsoïde. Dans la suite de cette section, nous reproduisons les grandes étapes de construction du modèle de Keller-Skalak [KS82].

Ce modèle est bâti sur l'hypothèse d'une particule délimitée par une surface rigide  $S$  dont la surface glisse autour du fluide de viscosité  $\eta_i$  contenu à l'intérieur. Cette particule est immergée dans un fluide de viscosité  $\eta_e$  soumis à un écoulement cisailé d'intensité  $\dot{\gamma}$ . On définit  $\lambda = \eta_i/\eta_e$  le contraste de viscosité entre les

fluides interne et externe.

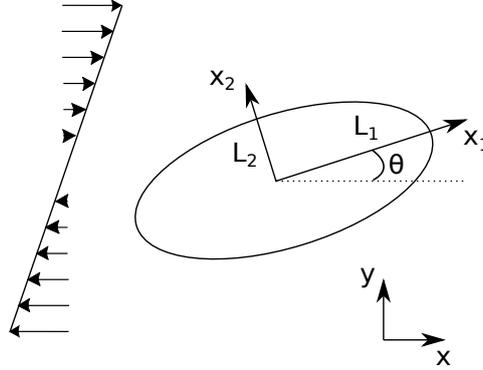


FIGURE 5.1 – Ellipsoïde rigide plongé dans un écoulement cisailé. Le repère  $(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z})$  correspond au repère cartésien fixe par rapport à l'écoulement. Le repère  $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}_3)$  correspond au repère cartésien lié au centre de l'ellipsoïde et orienté selon les trois axes principaux de celui-ci.

Soit  $(x, y, z)$  les coordonnées dans un repère cartésien fixe et  $(x_1, x_2, x_3)$  les coordonnées dans un second repère cartésien dont l'origine est le centre de l'ellipsoïde. L'axe  $\mathbf{x}_3$  coïncide avec l'axe  $\mathbf{z}$ , tandis que les axes  $\mathbf{x}_1$  et  $\mathbf{x}_2$  forment un angle  $\theta$  avec respectivement les axes  $\mathbf{x}$  et  $\mathbf{y}$  comme illustré figure 5.1.

Les demi-axes de l'ellipsoïde  $L_i$  avec  $i = 1, 2, 3$  sont définis par  $x_i^2/L_i^2 = 1$ , et les demi-axes adimensionnés  $\alpha_i$  sont tels que  $\alpha_i = L_i/L_0$  avec  $L_0 = (L_1L_2L_3)^{1/3}$ . L'angle  $\theta$  est défini tel que sa valeur est positive lorsque la rotation est dans le sens anti-horaire.

La vitesse de l'écoulement externe par rapport au repère lié à l'ellipsoïde et relative à celui-ci est notée  $\mathbf{v} = (v_1, v_2, v_3)$ , la vitesse de l'écoulement interne  $\mathbf{v}' = (v'_1, v'_2, v'_3)$ . La membrane réalise un mouvement de *tank-treading* dans le plan de l'écoulement : on considère une vitesse nulle de la membrane dans le plan orthogonal de l'écoulement. Cette vitesse  $\mathbf{v}^m$ , exprimée dans le repère de l'ellipsoïde et relative à l'ellipsoïde, est définie par :

$$v_1^m = \nu(-L_1/L_2)x_2 \quad v_2^m = \nu(L_2/L_1)x_1 \quad v_3^m = 0 \quad (5.2)$$

avec  $\nu$  un paramètre de fréquence généralement dépendant du temps. L'écoulement cisailé de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  relatif au système fixé et dans le même repère que précédemment s'écrit tel que  $v_i^0 = U_i^0 - \dot{\theta}\epsilon_{i3k}x_k$  avec  $\epsilon_{i3k}$  le tenseur des permutations et

$$U_1^0 = \dot{\gamma}(x_1\sin(\theta)\cos(\theta) + x_2\cos^2(\theta)) \quad (5.3)$$

$$U_2^0 = -\dot{\gamma}(x_1\sin^2(\theta) + x_2\sin(\theta)\cos(\theta)) \quad (5.4)$$

$$U_3^0 = 0 \quad (5.5)$$

Les écoulements interne et externe obéissent tous deux aux équations de Stokes, et les conditions limites associées au système sont :

$$v_i = v_i^m \quad \text{sur la membrane} \quad (5.6)$$

$$v_i = v_i^0 \quad \text{pour } |\mathbf{x}| \longrightarrow \infty \quad (5.7)$$

$$v'_i = v_i^m \quad \text{sur la membrane} \quad (5.8)$$

La construction du modèle de [KS82] s'appuie sur les résultats de (Jeffery 1992) et (Roscoe 1967) pour un ellipsoïde immergé dans un écoulement. (Jeffery 1922) détermine l'écoulement perturbé induit par un ellipsoïde immergé dans un écoulement linéaire, tandis que (Roscoe 1967) étudie l'écoulement produit par un ellipsoïde immergé dans un écoulement linéaire avec une vitesse surfacique non nulle et linéaire en  $x_i$ . En ajoutant la contribution d'un ellipsoïde en rotation dans un fluide au repos, [KS82] déterminent l'expression de  $\theta$  pour un ellipsoïde dont la membrane réalise un mouvement de *tank-treading* dans un écoulement cisailé, en utilisant l'équilibre des moments s'appliquant sur l'ellipsoïde.

On peut exprimer le moment résultant de l'écoulement externe sur la surface de l'ellipsoïde par rapport à son origine et dans le repère de celui-ci comme

$$M_i = \int_S \epsilon_{ijk} x_j T_k dA \quad T_i = \sigma_{ij} n_j \quad (5.9)$$

avec  $T_i$  le vecteur des contraintes,  $\sigma_{ij}$  le tenseur des contraintes hydrodynamiques lié au fluide externe et  $n_i$  le vecteur normal à la membrane et orienté vers le fluide externe. En utilisant la définition intégrale du volume et les propriétés de symétrie du tenseur des contraintes, le moment  $M_3$  s'écrit alors

$$M_3 = V(\sigma_{21} - \sigma_{12}) \quad (5.10)$$

Ce moment peut également être exprimé comme la somme de trois différentes contributions à travers la propriété d'additivité des solutions des équations de Stokes :

$$M_3 = M_3^S + M_3^F + M_3^T \quad (5.11)$$

avec  $M_3^S$  la contribution de l'écoulement cisailé sur un ellipsoïde rigide incliné à un angle stationnaire  $\theta$ ,  $M_3^F$  la contribution de la rotation d'un ellipsoïde rigide autour de l'axe  $x_3$  avec une vitesse angulaire  $\dot{\theta}$  dans un fluide au repos à l'infini, et  $M_3^T$  la contribution d'un ellipsoïde dont la membrane réalise un mouvement

de *tank-treading* dans un fluide au repos à l'infini. Ces moments s'expriment :

$$M_3^S = -\frac{1}{2}C\dot{\gamma}[a_1^2(1 - \cos(2\theta)) + a_2^2(1 + \cos(2\theta))] \quad \dot{\theta} = \nu = 0 \quad (5.12)$$

$$M_3^F = -C\dot{\theta}(a_1^2 + a_2^2) \quad \nu = \dot{\gamma} = 0 \quad (5.13)$$

$$M_3^T = -C2a_1a_2\nu \quad \dot{\theta} = \dot{\gamma} = 0 \quad (5.14)$$

avec

$$C = \frac{4\eta V}{a_1^2g_1 + a_2^2g_2} \quad g_i = \int_0^\infty \frac{ds}{\alpha_i^2 + s\Delta} \quad (5.15)$$

$$\Delta = (\alpha_1^2 + s)(\alpha_2^2 + s)(\alpha_3^2 + s) \quad (5.16)$$

On remarque que le moment  $M_3^S$  est construit comme le moment induit par un écoulement de rotation pure dont le moment est indépendant de  $\theta$  et un écoulement extensionnel pur de direction principale d'élongation  $\theta = \pi/4$ , chacun d'intensité  $\dot{\gamma}/2$ .

Lorsqu'on prend en compte le fluide interne enfermé dans l'ellipsoïde, un nouvel équilibre peut être exprimé. En effet, [KS82] fait l'hypothèse d'une particule sans flottabilité ni forces ou couples extérieurs. De plus, les effets inertiels sont négligés. Dans ce cas, le fluide interne est à l'équilibre et ne peut exercer de force ou de moment résultant des contraintes hydrodynamiques associées sur la membrane. La membrane, lorsqu'on la considère comme un corps immergé, est également à l'équilibre à chaque instant : les forces et couples résultants de l'action du fluide externe sur la membrane s'annulent. Dans ce cas, la seule composante des forces ou des moments qui ne s'annule pas est le moment  $M_3$  (équation 5.11). On peut alors écrire

$$M_3 = M_3^S + M_3^F + M_3^T = 0 \quad (5.17)$$

On remarque que tous les coefficients intervenant dans cette équation sont connus, sauf un :  $a_1, a_2, g_1, g_2, \dots$  qui ne dépendent que de la géométrie,  $\dot{\gamma}, \eta, \dots$  qui ne dépendent que de l'écoulement imposé. Il ne reste qu'à déterminer  $\nu$ , la fréquence de rotation de la membrane, pour avoir une équation différentielle sur  $\theta$  dont tous les coefficients sont déterminés et dont on peut alors examiner les solutions. Pour déterminer cette fréquence de rotation, [KS82] utilisent un argument énergétique que nous reproduisons dans la suite. Le fluide interne participe à la dissipation d'énergie dans le système considéré. Il est donc nécessaire de prendre en compte ce phénomène pour décrire totalement la dynamique de l'ellipsoïde. Pour cela, on prolonge le domaine de validité du profil de vitesse déterminé pour la surface de l'ellipsoïde (équation 5.2) :

$$v'_1 = \nu(-L_1/L_2)x_2 \quad v'_2 = \nu(L_2/L_1)x_1 \quad v'_3 = 0 \quad (5.18)$$

La dissipation correspondant à ce nouveau champ de vitesse dans le fluide interne s'exprime alors

$$\Phi' = \eta_e f_1 \nu^2 \quad (5.19)$$

avec

$$f_1 = (r_2 - r_2^{-1})^2 \quad f_2 = 4z_1 \left(1 - \frac{2}{z_2}\right) \quad f_3 = \frac{4z_1}{z_2} \quad (5.20)$$

$$r_2 = \frac{L_2}{L_1} \quad r_3 = \frac{L_3}{L_1} \quad (5.21)$$

La dissipation  $\Phi'$  étant homogène spatialement, le taux de dissipation dans le fluide interne  $D'$  s'écrit donc

$$D' = V \eta_a f_1 \nu^2 \quad \eta'_a = (1 + d) \eta_e \quad (5.22)$$

Ici, on utilise la viscosité apparente  $\eta'_a$  définie par [KS82] pour représenter non seulement les effets visqueux dans le fluide interne mais également la dissipation d'énergie dans la membrane de l'ellipsoïde. L'hypothèse sous-jacente est que le taux de dissipation dans la membrane est proportionnel à celui du fluide interne d'un coefficient  $d$ .

L'analyse énergétique définit de nouvelles contraintes sur le mouvement de l'ellipsoïde à travers l'équilibre entre l'énergie dissipée dans l'ellipsoïde et celle apportée par l'écoulement externe. Celui-ci apporte de l'énergie à la particule à un taux  $W_p$  défini par

$$W_p = \int_S T_x v_x^m dA \quad (5.23)$$

avec  $T_x$  le tenseur des contraintes et  $v_x^m$  la vitesse à la surface de la membrane définis par rapport au repère fixe  $(x, y, z)$ . Par conservation de l'énergie dans le système, on a alors

$$W_p = D' \quad (5.24)$$

[KS82] cite deux solutions possibles de l'équation précédente pour le mouvement de l'ellipsoïde en fonction de la pulsation  $\nu$ .

La première solution,  $\nu = 0$  consiste en un ellipsoïde rigide, sans mouvement de *tank-treading*. Cette solution ne dissipe pas d'énergie, et  $W_p = D' = 0$ .

La seconde solution,  $\nu = -f_3 [f_2 - \lambda f_1]^{-1} \dot{\gamma} \cos(2\theta)$  correspond à la fréquence de rotation du *tank-treading* pour un ellipsoïde de forme fixe et présentant un contraste de viscosité entre le fluide interne et externe. C'est cette seconde solution qui est utilisée par [KS82].

Plusieurs informations peuvent être déduites de cette relation. Si l'ellipsoïde est

en état stationnaire, donc avec une forme fixe et un angle d'inclinaison qui n'évo-  
lue pas avec le temps, la fréquence de *tank-treading* n'évo-  
lue pas. Cependant, si la particule tourne sur elle-même,  $\nu$  et  $\theta$  varient avec le temps. Ces deux cas  
dépendent des paramètres du système considéré, comme nous le verrons par la  
suite.

Le modèle de [KS82] détermine donc l'évolution temporelle  $\dot{\theta}$  de l'angle d'incli-  
naison de l'ellipsoïde en fonction des paramètres géométriques définis ci-dessus,  
du contraste de viscosité  $\lambda$  et de l'intensité de l'écoulement externe  $\dot{\gamma}$ . Il s'exprime  
de la façon suivante :

$$\dot{\theta} = A + B \cos(2\theta) \quad (5.25)$$

$$A = -\frac{1}{2}\dot{\gamma} \quad B = 2\dot{\gamma}\left\{\frac{1}{2} + z_1^{-1}f_3[f_2 - \lambda f_1]^{-1}\right\}z_1/(r_2^{-1} + r_2) \quad (5.26)$$

avec

$$z_1 = \frac{1}{2}(r_2^{-1} - r_2) \quad z_2 = g'_3(\alpha_1^2 + \alpha_2^3) \quad (5.27)$$

et l'intégrale  $g'_3$  telle que

$$g'_3 = \int_0^\infty \frac{ds}{(\alpha_2^2 + s)(\alpha_3^2 + s)\Delta} \quad (5.28)$$

Lorsque le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est positif et lorsque la relation  $1 \geq r_3 \geq r_2$ ,  
ce qui est valable pour les ellipsoïdes de type prolata ou oblata, le coefficient  $B$   
est toujours positif. [KS82] définit alors deux types de solution pour le modèle  
précédent :

- Si  $B > -A$ , la solution à l'équation 5.26 est transitoire et converge vers  
une inclinaison stationnaire d'angle  $\theta_0$ . On observe alors une dynamique  
de type *tank-treading*.
- Si  $B < -A$ , l'équation 5.26 possède une solution périodique  $\theta(t)$  corres-  
pondant à la rotation de l'ellipsoïde dans le plan de l'écoulement. Le phé-  
nomène de *tumbling* se met alors en place.

Pour une forme fixe et un écoulement externe établi, c'est le contraste de vis-  
cosité  $\lambda$  qui déterminera la dynamique de l'ellipsoïde dans l'écoulement. Cette  
dépendance est illustrée figure 5.2 pour deux formes différentes (définies par la  
sphéricité  $s_0$ ). Au-dessus des courbes tracées, l'ellipsoïde manifestera un mouve-  
ment de *tumbling*, en dessous, de *tank-treading*. Bien que cette figure montre une  
certaine insensibilité de la transition entre ces deux dynamiques au ratio  $r_3$ , elle  
met en valeur l'importance du contraste de viscosité  $\lambda$  dans l'étude de la dyna-  
mique d'un objet immergé dans un écoulement cisailé ou linéaire. Cette analyse

s'applique aux polymersomes, dont la forme quasi-sphérique et la résistance à la déformabilité qui y est associée se rapproche du cas étudié par [KS82]. L'enjeu ici est donc d'estimer l'influence de l'évolution de la forme du polymersome sur cette transition, mais surtout de comparer cette dépendance au contraste de viscosité avec la viscosité membranaire caractéristique du polymersome.

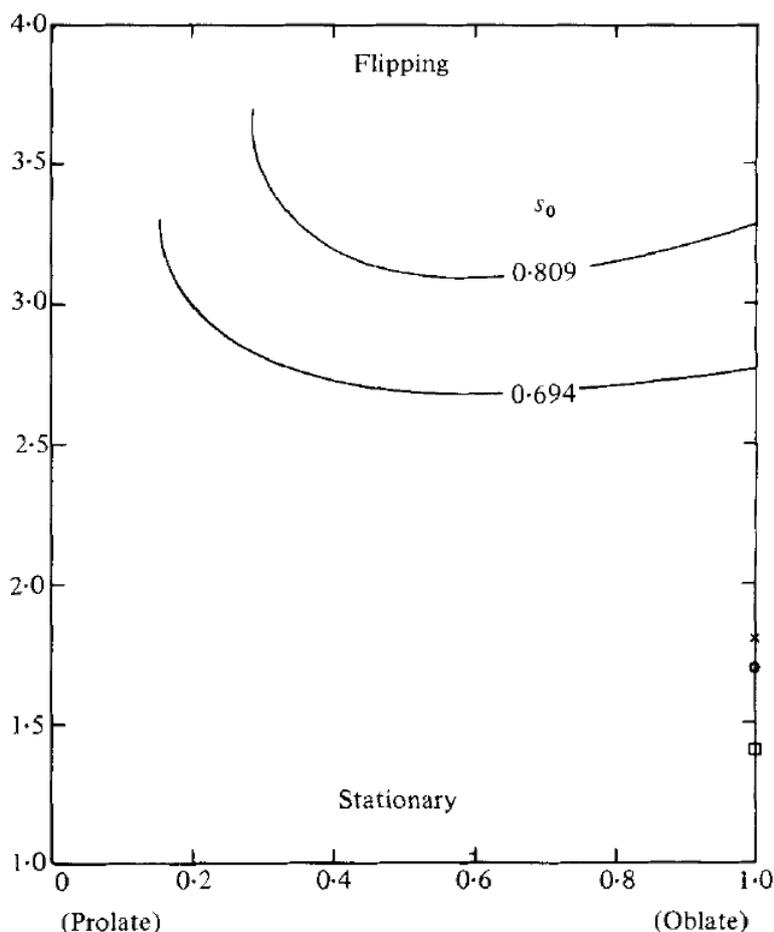


FIGURE 5.2 – Contraste de viscosité de transition entre les dynamiques de *tank-treading* ("stationary") et de *tumbling* ("flipping"). En abscisses, le ratio  $r_3$ ; en ordonnées, le contraste de viscosité  $\lambda$ .  $s_0 = (6\pi^{1/2}V)^{2/3}S^{-1}$  est une mesure de la sphéricité de l'ellipsoïde, avec  $S$  et  $V$  respectivement la surface de l'ellipsoïde et le volume englobé dans celle-ci. Les symboles représentent les observations expérimentales de (Besins et Mohandas 1975)(croix et carrés) et de (Morris et Williams 1979)(ronds).

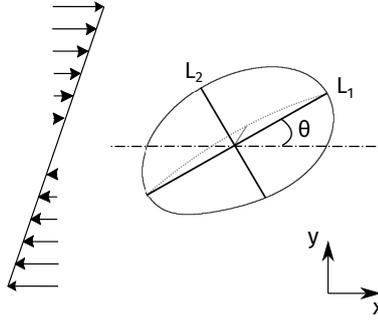


FIGURE 5.3 – Système étudié : un polymersome plongé dans un écoulement cisailé de direction  $\mathbf{x}$  et d'intensité  $\dot{\gamma}$ . Les grandeurs  $L_1$ ,  $L_2$  et  $L_3$  correspondent aux demi-axes de l'ellipsoïde équivalent d'inertie, et  $\theta$  est défini comme l'angle formé par le demi-axe de longueur  $L_1$  avec la direction de l'écoulement.

### 5.3 Dynamique d'un polymersome faiblement dégonflé sous écoulement cisailé

La système étudié dans ce chapitre consiste en un polymersome de volume réduit  $v < 1$  plongé dans un écoulement cisailé d'intensité  $\dot{\gamma}$ . Les nombres adimensionnels utilisés pour caractériser chaque cas sont les nombres capillaire et de Boussinesq associé à la viscosité surfacique de cisaillement tels que

$$Ca = \frac{\dot{\gamma}\eta R_0^3}{\kappa} \quad Bq_s = \frac{\mu_s}{\eta R_0} \quad (5.29)$$

avec  $R_0$  le rayon effectif du polymersome ( $= [3V/(4\pi)]^{1/3}$ ). Dans un premier temps, nous observons la dynamique d'un polymersome faiblement dégonflé par rapport à la sphère. Dans cette limite, les déformations membranaires sont limitées et aucune transition de forme n'est observée dans la gamme de paramètres considérée. L'objectif ici est de caractériser les paramètres pour lesquels apparaissent les mouvements de *tank-treading*, de *trembling* et de *tumbling* observés pour des vésicules avec contraste de viscosité et sans viscosité surfacique. Afin de mesurer ces mouvements, nous utiliserons le paramètre de Taylor  $D$  ainsi que l'angle d'inclinaison  $\theta$  entre le demi-axe le plus grand de l'ellipsoïde d'inertie équivalent et la direction de l'écoulement.

Nous concentrerons les prochains résultats sur le cas  $v = 0.85$  avec un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 5$  de l'écoulement externe. Comme pour une vésicule, la forme de minimum d'énergie membranaire globale est la forme prolata définie par la relation  $L_1 > L_2 \sim L_3$ .

La comportement qui apparaît à faible nombre de Boussinesq est la dynamique de *tank-treading*. Cette dynamique est caractérisée par une élongation stationnaire du polymersome due à la composante élongationnelle de l'écoulement cisailé et à un angle d'inclinaison fixe et positif par rapport à la direction de l'écoulement (figure 5.4). La membrane du polymersome, dans ce cas, effectue un mouvement de chenille de char autour de la forme fixe du polymersome.

La figure de droite représente le portrait de phase typique d'un polymersome qui présente un mouvement de *tank-treading*. Ce diagramme est similaire à celui d'une vésicule : on observe une évolution commune de l'inclinaison et de la déformation de la vésicule jusqu'à atteindre un point fixe, qui correspond à l'état stationnaire dans l'écoulement considéré.

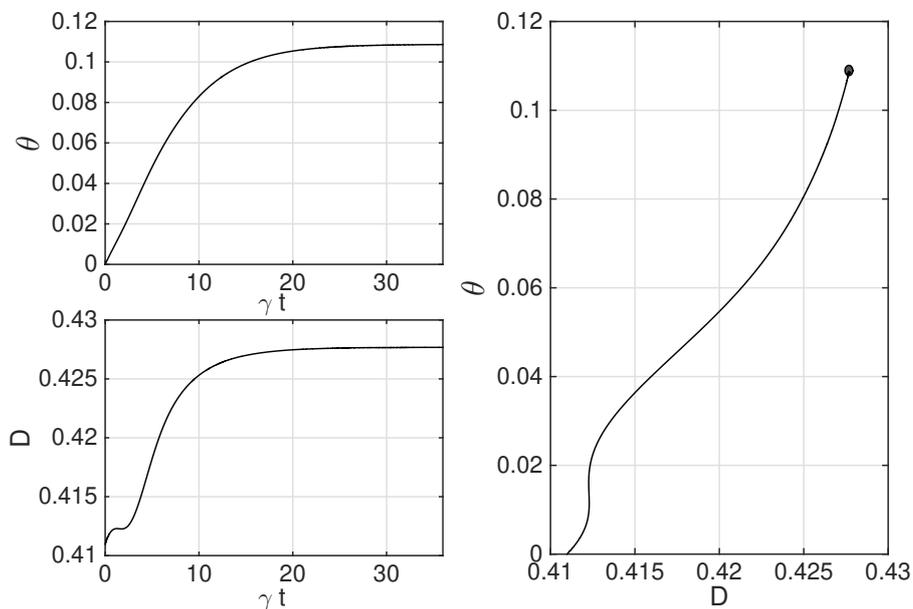


FIGURE 5.4 –  $Bq_s = 3$ ,  $v = 0.85$  et  $Ca = 5$  - Mouvement de *tank-treading*. **A gauche** : évolution temporelle de l'angle d'inclinaison et de la déformation de la membrane. **A droite** : portrait de phase.

Ici, la viscosité de surface joue également un rôle dans le mouvement membranaire. L'influence de cette viscosité sur l'angle d'inclinaison est illustrée figure 5.5 (en haut) pour deux volumes réduits différents. Pour un nombre capillaire  $Ca = 0.92$ , on observe une forte dépendance de l'angle  $\theta$  au nombre de Boussinesq  $Bq_s$ . Cette dépendance s'accroît avec la déformabilité de la membrane. La relation 5.22 exprimant une dépendance entre le taux de dissipation dans la membrane, le volume de la particule et la viscosité du fluide interne dans le cas d'un contraste de viscosité semble donc avoir un équivalent ici avec la viscosité de membrane.

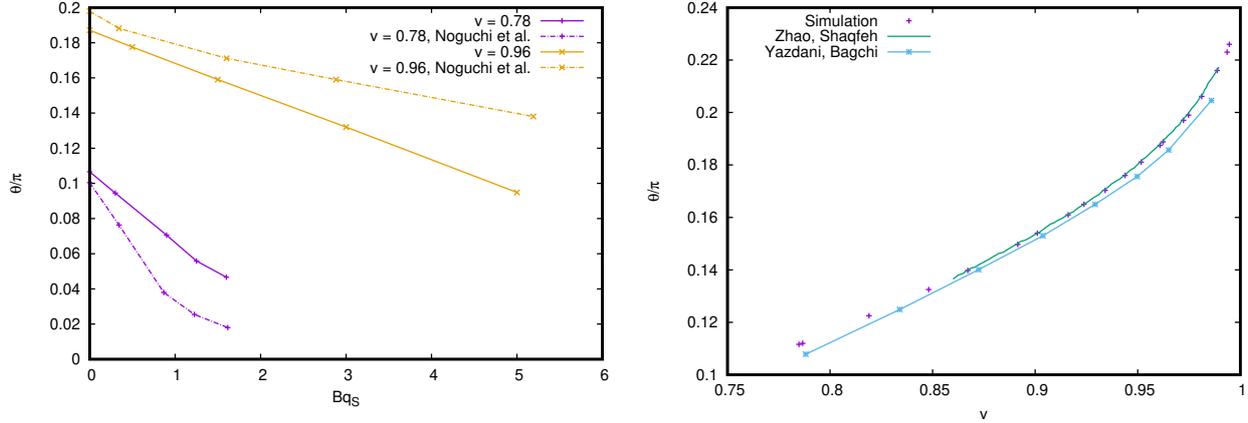


FIGURE 5.5 – **En haut** : Angle d’inclinaison d’un polymersome sous écoulement cisaillé,  $Ca = 0.92$  et comparaison avec les résultats de [NG04]. **En bas** : Angle d’inclinaison d’une vésicule sous écoulement cisaillé,  $Ca = 10$ , aucune viscosité membranaire et aucun contraste de viscosité. Les résultats de simulation sont comparés aux données issues de [ZSS11] et [YB12]

On remarque ici que les résultats présentés ont la même tendance que les données présentées dans [NG04] mais ne correspondent pas quantitativement jusqu’à un facteur 2. Nous rappelons que la force interfaciale due à la viscosité surfacique de cisaillement a été validé de diverses manières par comparaison avec des résultats analytiques [Gou+16]. De même, les résultats obtenus avec une vésicule sans viscosité membranaires (figure 5.5 en bas) sont en accord avec les données de [ZS11] pour de faibles dégonflements par rapport à la sphère et de [YB12] sur toute la gamme de paramètres considérés. Une piste possible d’explication de cette désaccord important est la différence fondamentale de modélisation : dans notre cas, nous utilisons une approche de mécanique des milieux continus, avec un contrôle direct des propriétés mécaniques de l’interface (les coefficients  $\kappa, \mu_s$ ), alors que, comme évoqué dans l’introduction de ce chapitre, [NG04] utilisent une approche de dynamique moléculaire, avec un contrôle indirect de ces mêmes coefficients et un probable calcul approximatif des lois de conservation comme celle du moment cinétique.

On observe pour certaines valeurs du nombre de Boussinesq  $Bq_s$  une évolution différente vers la dynamique de tank-treading. Alors que précédemment, pour  $Bq_s = 3$ , l’état stationnaire est atteint de manière monotone, on peut voir des oscillations amorties apparaître et converger vers la forme et l’inclinaison stationnaires attendues (figure 5.6). L’écoulement externe ne suffisant pas à impulser une dynamique complète de *tumbling*, le polymersome subit des oscillations alors que le fluide interne et la viscosité membranaire convergent vers un état stationnaire et stabilisent la dynamique de *tank-treading*. On remarque par ailleurs que l’angle d’inclinaison stationnaire est négatif. Par analogie avec les

diagrammes de phase établis pour une vésicule avec contraste de viscosité, on peut alors imaginer la proximité d'une dynamique oscillante de type *tumbling* ou *trembling*.

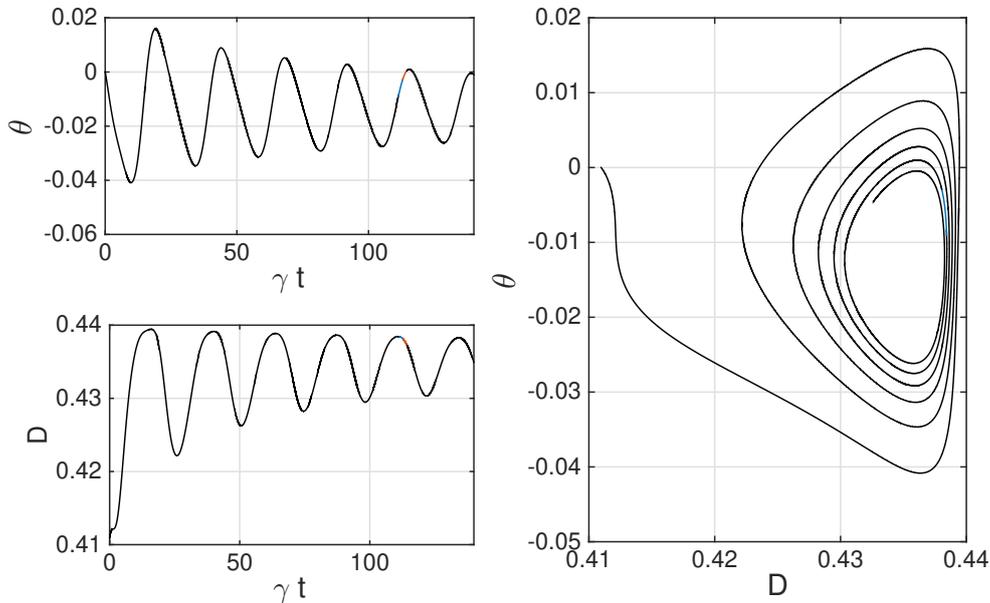


FIGURE 5.6 –  $Bq_s = 3.5$ ,  $v = 0.85$  et  $Ca = 5$  - Oscillation amortie vers un mouvement de *tank-treading* avec un angle final négatif.

L'augmentation de la valeur de  $Bq_s$  fait en effet apparaître une dynamique périodique de type *trembling* (figure 5.7). Similaire au mouvement de *vacillating-breathing* pour une vésicule avec un contraste de viscosité, le polymersome oscille autour de son axe orthogonal au plan de cisaillement en se déformant sans jamais atteindre une inclinaison de  $\frac{\pi}{2}$  (figure 5.8). Les plus grandes déformations coïncident avec le maximum d'inclinaison, rapproché de la direction d'élongation principale de l'écoulement cisailé situé en  $\pi/4$ . Des déformations dans le plan orthogonal à l'écoulement sont également observées, dues à une interaction entre la compression résultant de l'écoulement sur la membrane dans l'axe  $z$  et les différentes contraintes de conservation (volume interne, surface de la membrane). La viscosité surfacique accentue l'amplitude de l'inclinaison lors de cette dynamique. Pour  $Bq_s = 4$ , l'angle d'inclinaison maximal est de  $\approx 0.13\text{rad}$  tandis que pour  $Bq_s = 5.67$ , il est de  $\approx 0.6\text{rad}$ . Cette amplification, lorsqu'on augmente encore la viscosité membranaire, conduit à la dynamique de *tumbling* pour laquelle la rotation est complète et  $\theta_{max} = \frac{\pi}{2}$  (figure 5.9). Le polymersome effectue une rotation complète autour de son axe et subit une déformation maximale pour  $\theta = \pi/2$  due aux phénomènes d'élongation sur l'axe  $\theta = \pi/4$  et sur l'axe  $\theta = -\pi/4$  dus à la composante extensionnelle de l'écoulement (figure 5.9).

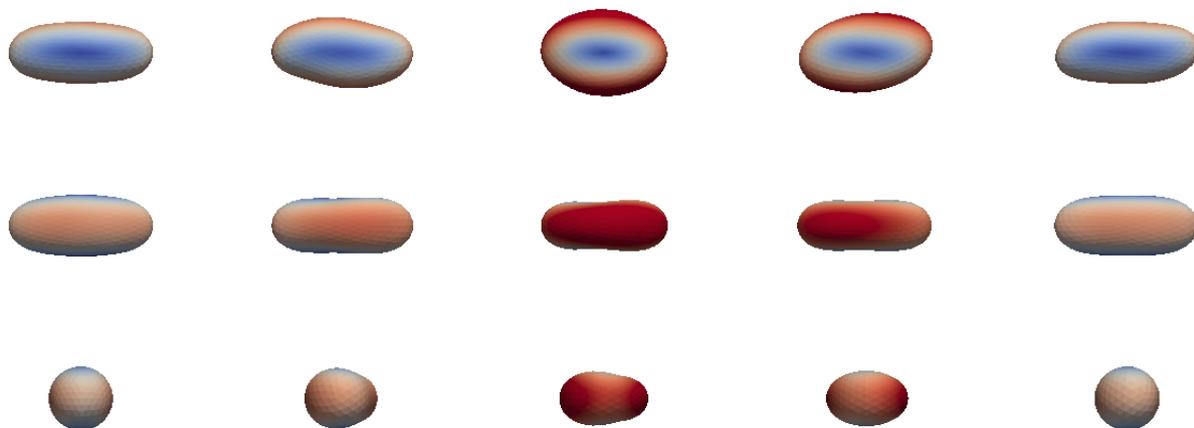


FIGURE 5.7 – Formes durant une période de *trembling* induit par la viscosité interfaciale de cisaillement observée pour  $Bq_s = 4$  et pour  $t = 0$  jusqu'à  $t = 15$  (gauche vers la droite). **Haut** : vue orthogonale au plan de l'écoulement. **Milieu** : Vue de dessus. **Bas** : vue par devant.

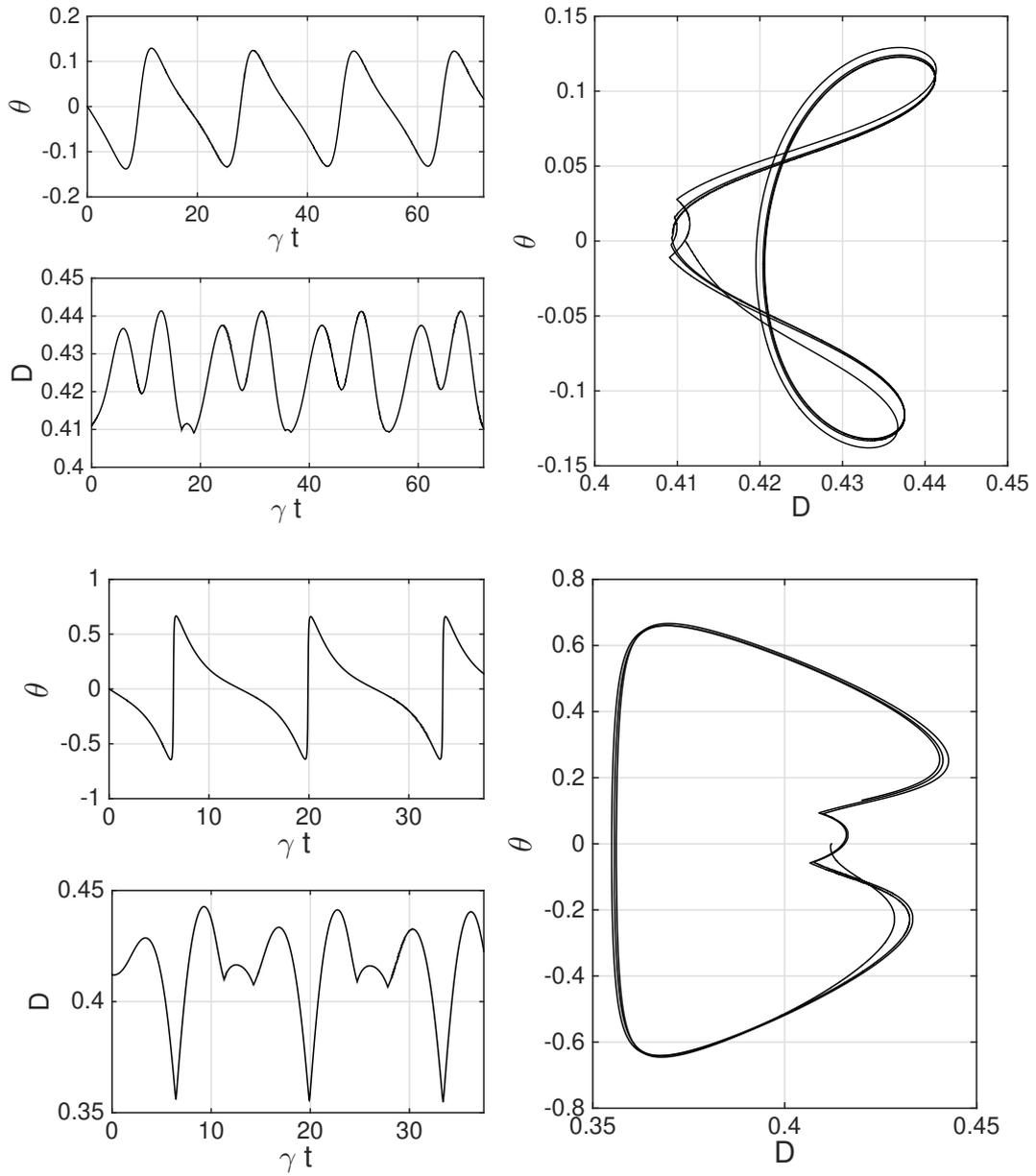


FIGURE 5.8 –  $Bq_s = 4.0$  (haut) et  $Bq_s = 5.67$  (bas),  $v = 0.85$  et  $Ca = 5$  : Oscillation permanente d'un polymersome appelée dynamique de *trembling* ou *vascillating-breathing* par analogie avec le cas de vésicules à contraste de viscosité.

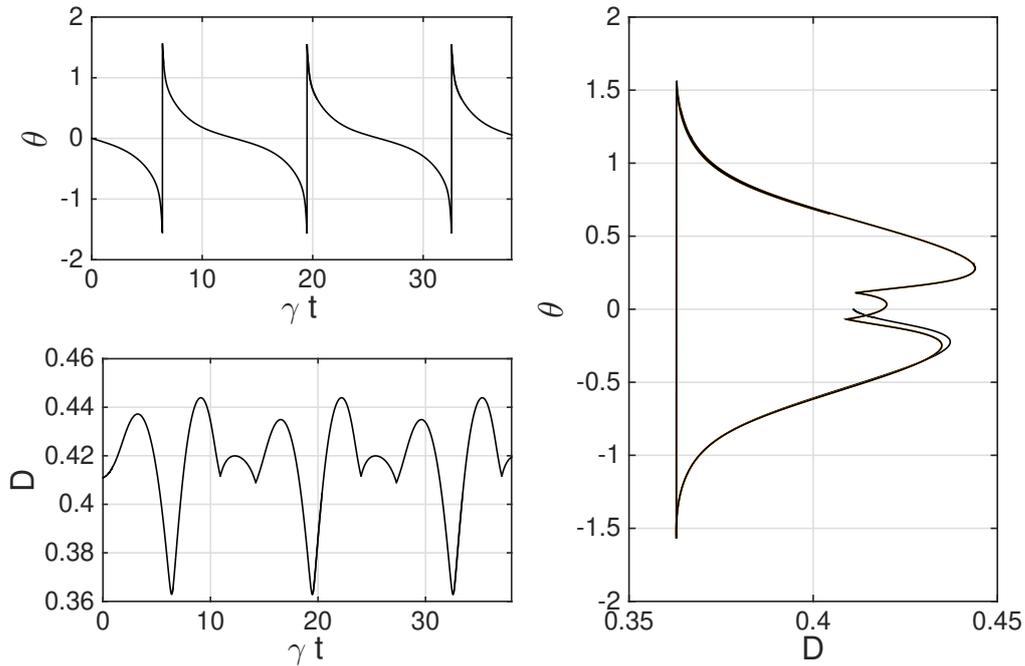


FIGURE 5.9 –  $Bq_s = 6.0$ ,  $v = 0.85$  et  $Ca = 5$  - Rotation permanente d'un polymère autour de l'axe de vorticit   appel  e dynamique de tumbling par analogie avec le cas de v  sicules    fort contraste de viscosit  .

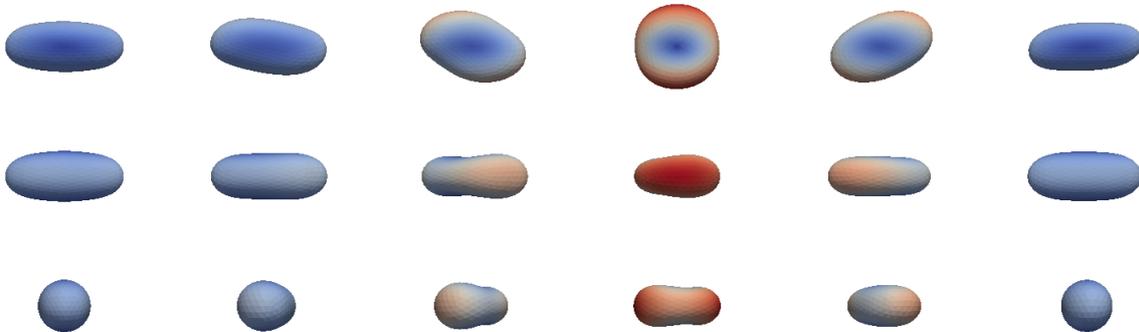


FIGURE 5.10 – Formes durant une p  riode de *tumbling* induit par la viscosit   interfaciale de cisaillement pour  $Bq_s = 6.0$  et de  $t = 0$      $t = 14$  (gauche vers la droite). **Haut** : vue orthogonale au plan de l'  coulement. **Milieu** : Vue de dessus. **Bas** : vue par devant.

Une fois ces dynamiques clairement identifi  es, nous pouvons construire un diagramme de phase de la m  me mani  re que pour une v  sicule avec contraste de viscosit   [DKS09], [KFM09]. En prenant comme param  tres le nombre de

Boussinesq  $Bq_s$  et le nombre capillaire  $Ca$ , nous délimitons différentes zones correspondant aux mouvements décrits précédemment.

De la même manière que pour une vésicule, nous observons deux zones distinctes en parcourant le paramètre  $Ca$ . Dans la première zone, jusqu'à  $Ca = 0.6$ , l'augmentation de la viscosité membranaire fait disparaître le tank-treading au profit du tumbling. En effet, pour des valeurs de  $Ca$  faibles devant l'unité, l'influence de la résistance à la flexion de la membrane est dominante par rapport aux effets hydrodynamiques, et la membrane agit comme une surface rigide. La déformabilité nécessaire au *trembling* est alors impossible, et le polymersome se comporte comme un ellipsoïde rigide tel que décrit par [KS82]. Dans la seconde, on observe tout d'abord une dynamique oscillatoire amortie de *tank-treading* (figure 5.6) puis une zone de *trembling* (ou *vacillating-breathing*) qui s'étend sur toute la gamme de mesures de  $Ca$  et apparaît entre les dynamiques de *tank-treading* et de *tumbling* lorsque le nombre de Boussinesq  $Bq_s$  augmente. On remarque par ailleurs que pour un plus petit dégonflement ( $v = 0.95$ ), la valeur critique à partir de laquelle la dynamique change augmente (figure 5.12).

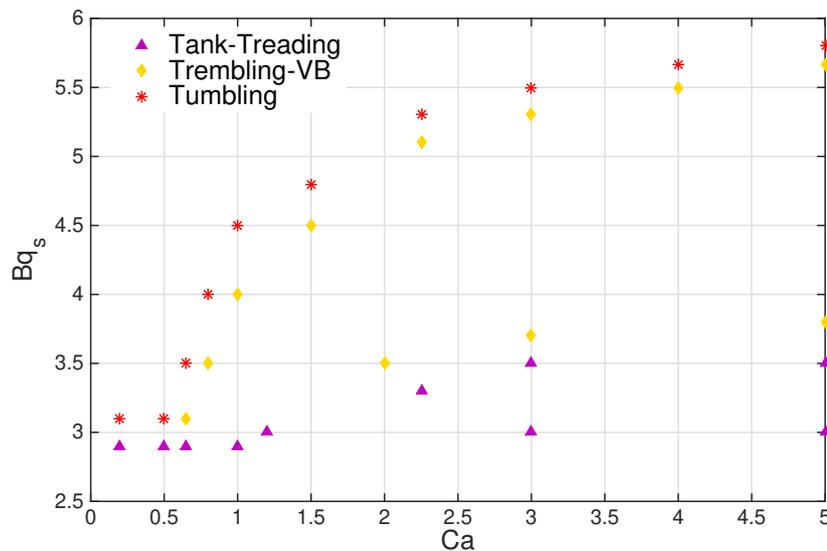


FIGURE 5.11 – Diagramme de phase des dynamiques de forme d'un polymersome de dégonflement  $v = 0.85$  dans un écoulement de cisaillement simple.

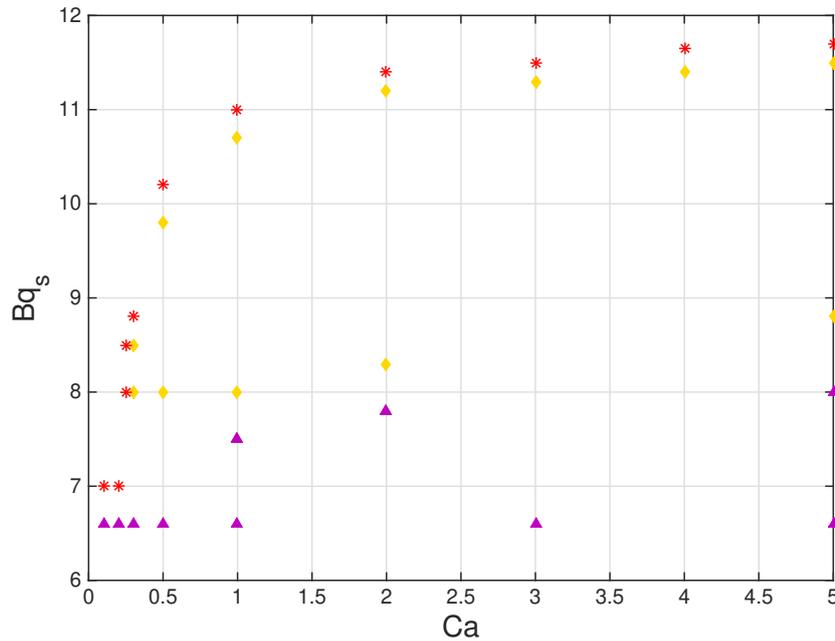


FIGURE 5.12 – Diagramme de phase des dynamiques de forme d'un polymersome de dégonflement  $v = 0.95$  dans un écoulement de cisaillement simple.

## 5.4 Dynamique d'un polymersome oblate à fort dégonflement de type globule rouge $v = 0.6$

Nous étudions maintenant un polymersome de volume réduit  $v = 0.60$ , comparable à celui d'un globule rouge. De la même manière qu'une vésicule, la forme de minimum global d'énergie dans la membrane est la forme oblate pour ce dégonflement. Lorsqu'on immerge ce polymersome dans un écoulement cisailé d'intensité  $\dot{\gamma}$ , nous assistons à partir d'une certaine valeur critique du nombre de Boussinesq à une transition vers une forme prolata. A la lumière des résultats présentés dans la partie , nous décrivons l'influence de la viscosité membranaire sur ce phénomène et sur la dynamique globale de la particule.

La figure 5.13 représente l'évolution de la forme et de l'inclinaison du polymersome dans le plan de l'écoulement pour un faible nombre capillaire ( $Ca = 0.5$ ). Ici, la forme reste oblate quelle que soit l'intensité des effets visqueux sur la membrane et subit un mouvement de *tank-treading* caractérisé par une forme et un angle d'inclinaison stationnaires. Alors que le profil d'évolution de la forme et de l'angle d'inclinaison est similaire quelle que soit la valeur de  $Bq_s$ , celui-ci a une influence sur les valeurs stationnaires qui décroissent lorsque la viscosité surfacique augmente. Ainsi, pour une membrane non visqueuse, le paramètre de

Taylor stationnaire est de 0.625 environ, tandis qu'il est inférieur à 0.59 pour  $Bq_s = 6$ . Cette dépendance est en accord avec l'évolution de l'angle d'inclinaison pour de plus faibles dégonflements, comme présentés figure 5.5 : en effet, l'alignement du polymersome avec la direction principale d'élongation de l'écoulement cisailé s'affaiblit et diminue la déformation de la membrane dans le plan de l'écoulement.

Lorsqu'on augmente le nombre capillaire, l'élongation du polymersome augmente et peut mener à une transition vers une forme prolate. Pour  $Ca = 1$ , on observe cette transition pour une viscosité de cisaillement nulle (figure 5.14). Dans ce cas, le paramètre de Taylor évolue dans une autre gamme de valeurs qui n'est pas représentée ici. La viscosité membranaire ayant un effet stabilisant sur la forme de la membrane, lorsqu'elle augmente, la forme de la membrane reste oblate et on retrouve la dynamique observée pour de plus petits nombres capillaires. La proximité de cette transition pour de petits nombres de Boussinesq se retrouve d'ailleurs dans le maximum local de l'inclinaison peu après que l'écoulement soit mis en place. On peut donc supposer que la viscosité membranaire agit sur le nombre capillaire critique à partir duquel le polymersome de forme oblate évolue vers une forme prolate.

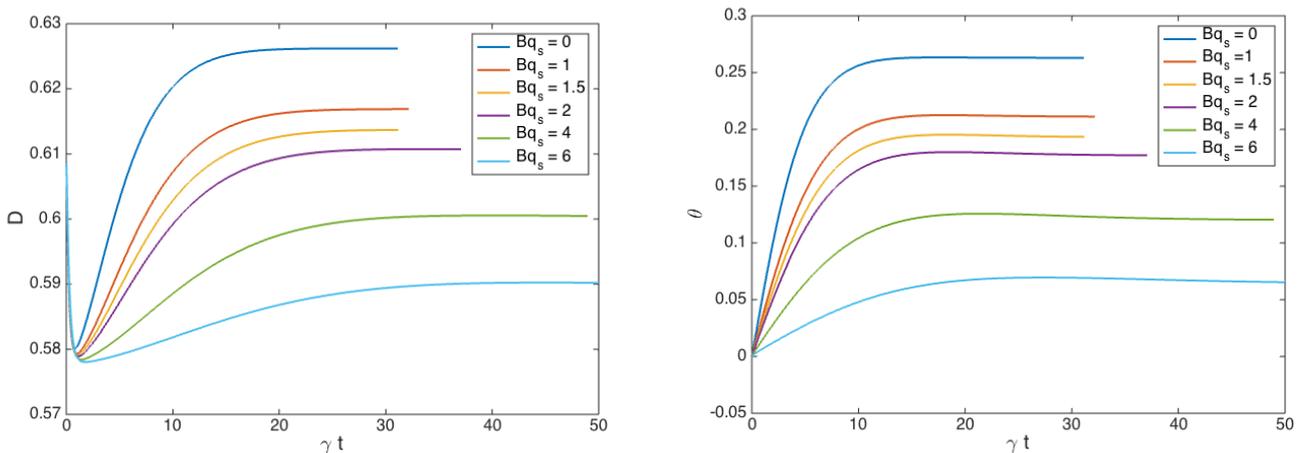


FIGURE 5.13 – Évolution de la déformation  $D_T$  et de l'orientation  $\theta$  d'un polymersome oblate de dégonflement  $v = 0.6$  dans un cisaillement simple :  $Ca = 0.5$ .

Cet effet stabilisant s'illustre lorsqu'on compare la contribution de la viscosité de cisaillement à nombre capillaire fixé sur la déformation et l'inclinaison de ce polymersome (figure 5.15). La viscosité de surface inhibe l'élongation de la membrane : plus ses effets sont importants et plus la forme du polymersome est proche de l'état initial sans écoulement. On peut donc imaginer que pour un certain nombre de Boussinesq, la viscosité membranaire domine la dynamique membranaire au point de faire apparaître un mouvement équivalent à

celui d'une membrane rigide pour laquelle seule l'influence de la composante rotationnelle de l'écoulement cisailé serait observable, donc une rotation autour de l'axe orthogonal au plan de l'écoulement

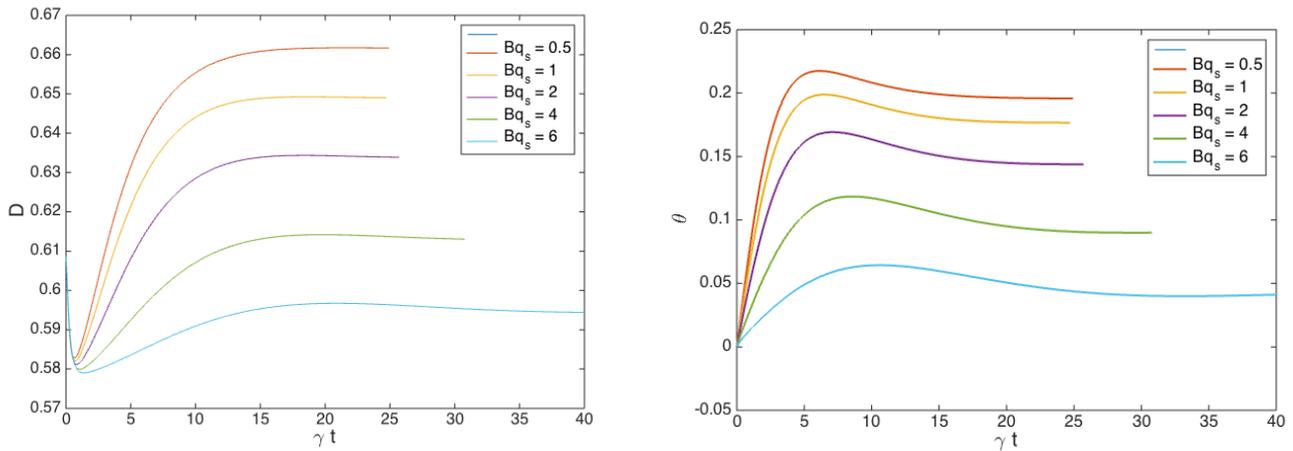


FIGURE 5.14 – Évolution de la déformation  $D$  et de l'orientation  $\theta$  d'un polymère oblate de dégonflement  $v = 0.6$  dans un cisaillement simple :  $Ca = 1$ .

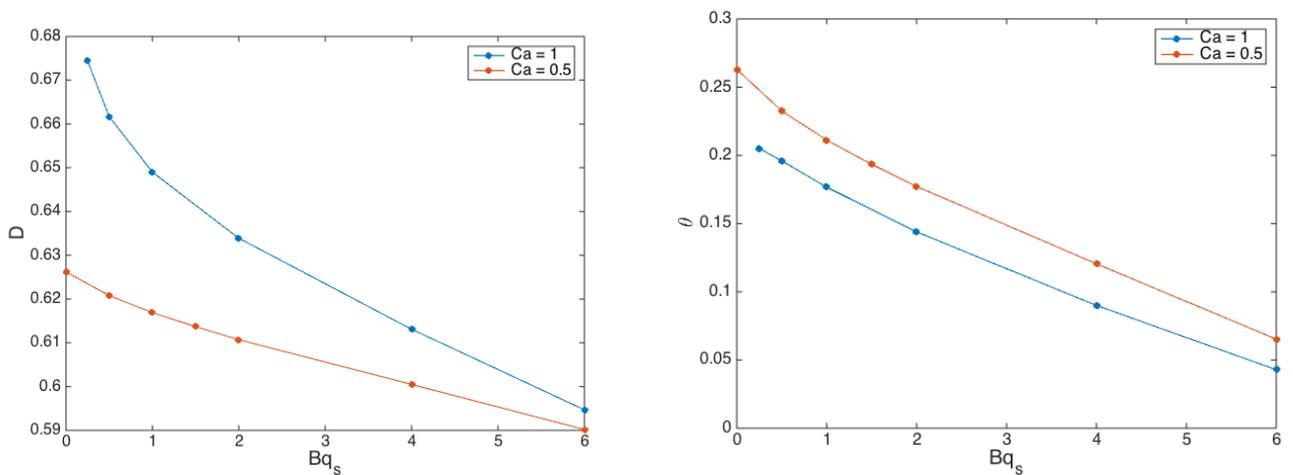


FIGURE 5.15 – Comparaison entre les comportements à  $Ca = 0.5$  et  $Ca = 1$  en fonction de la viscosité de cisaillement.

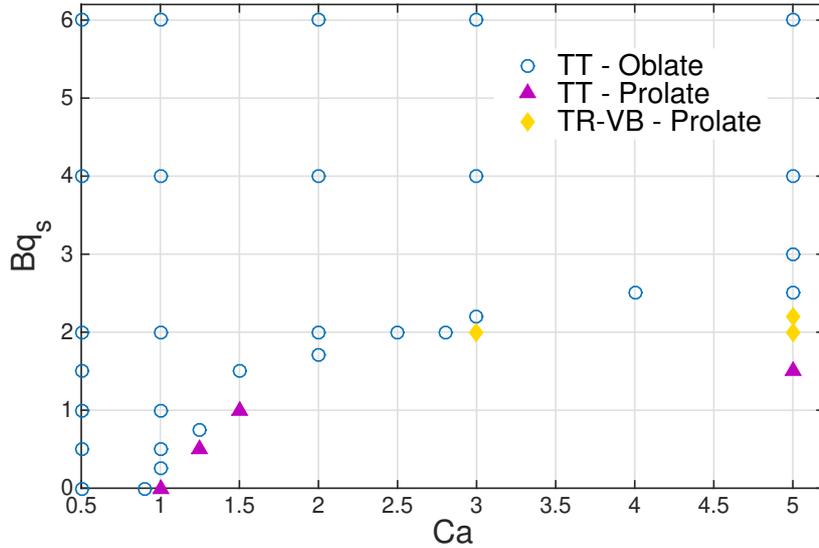


FIGURE 5.16 – Diagramme d’un polymersome oblate de volume réduit  $v = 0.6$  dans un écoulement de cisaillement simple pour  $Bq_s \leq 6$ . Quatre dynamiques sont observées : i) le polymersome reste oblate et effectue un mouvement de tank-treading sans relaxation oscillante. ii) le même comportement mais avec une relaxation oscillante. iii) Le polymersome oblate transite en prolata et effectue un mouvement de tank-treading (triangle). iv) le polymersome transite en prolata et effectue un mouvement de trembling-VB (diamant).

Nous contruisons le diagramme de phase d’un polymersome de volume réduit  $v = 0.6$  pour décrire l’influence des sollicitations hydrodynamiques et membranaires à l’aide des paramètres  $Ca$  et  $Bq_s$ . Pour un nombre de Boussinesq non nul, on observe une évolution du nombre capillaire critique à partir duquel on observe la transition vers une forme prolata. Cette évolution s’accompagne de l’apparition d’une dynamique oscillatoire dans le mouvement de *tank-treading* du polymersome oblate, qui conduit pour  $Ca > 2$  à l’apparition de *trembling* dans une certaine gamme de valeurs de  $Bq_s$  comme illustré figure 5.17. Dans le cas d’une vésicule avec contraste de viscosité mais sans viscosité surfacique, une dynamique de tumbling particulière devrait apparaître [FM12]. Cependant, on peut supposer que la viscosité membranaire inhibe les grandes déformations caractéristiques des faibles volumes réduits et nous retrouvons des dynamiques similaires à celles observées pour  $v = 0.85$  par exemple (figure 5.8).

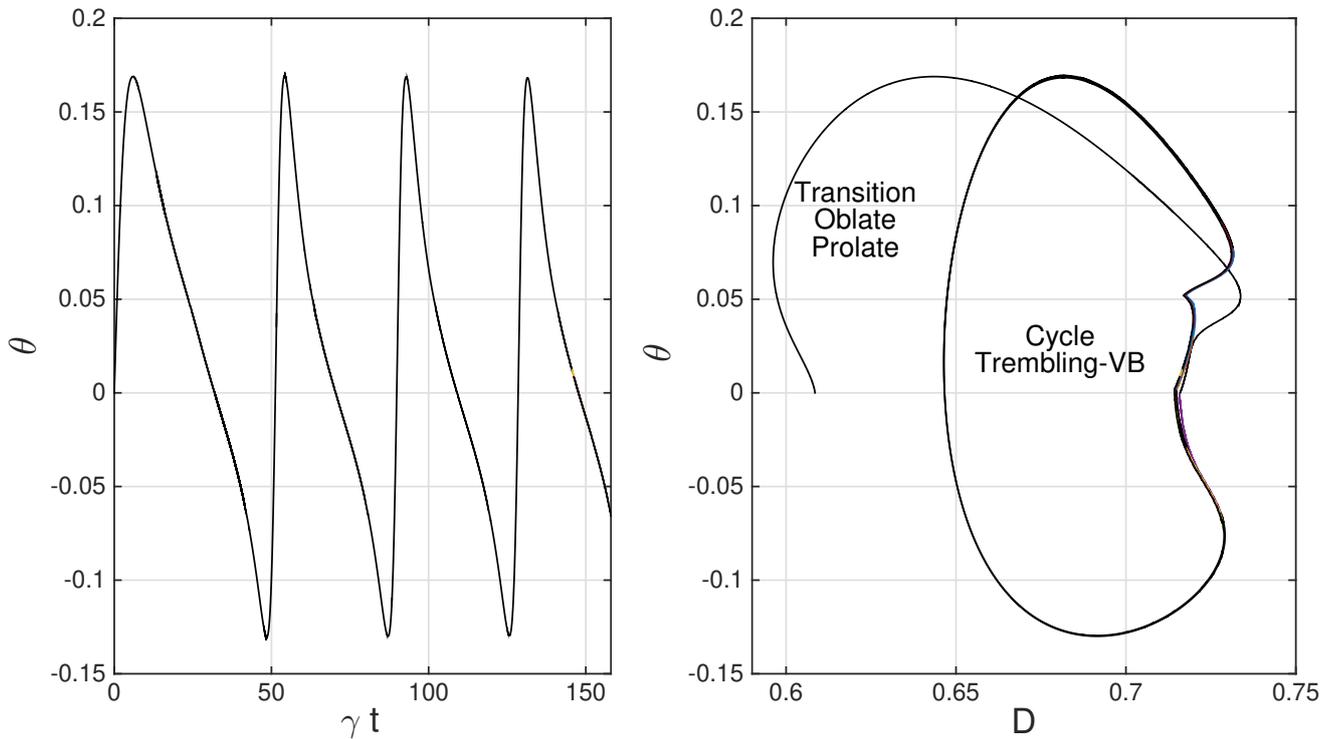


FIGURE 5.17 – Mode Trembling-VB : oscillation de l’inclinaison et portrait de phase  $(D, \theta)$  dans le cas  $v = 0.6$ ,  $Ca = 5$  et  $Bq_s = 2$ . Il a la même forme pour l’ensemble des points du diagramme précédent de  $Ca = 3$  à  $Ca = 50$ .

## 5.5 Conclusion

L’étude de la dynamique d’un polymersome sous écoulement cisailé a permis de mettre en lumière l’influence de la viscosité membranaire sur la dynamique globale de l’objet immergé. Nous avons assuré la validité du code de calcul utilisé au cours de la thèse pour ce nouveau système par la comparaison avec les résultats de la littérature. Par la suite, nous avons étudié la dynamique d’un polymersome dans la limite d’une forme quasi-sphérique plongé dans un écoulement cisailé. Nous retrouvons alors les solutions prévues par le modèle de Keller-Skallak pour un ellipsoïde de forme fixe. L’analyse des mouvements de *tank-treading*, de *trembling* et de *tumbling* ainsi que le tracé de leur portrait de phase nous permet de valider l’hypothèse d’une analogie avec les effets d’un contraste de viscosité pour une vésicule. Un phénomène d’oscillation amortie a été observé pour une gamme de paramètres proches de la transition vers le *trembling* ou le *tumbling*. Nous avons commencé à construire des diagrammes

de phase qui présentent une allure similaire à ceux observés expérimentalement [DKS09] ou numériquement [BFM11 ; SZS14] pour une vésicule, en remplaçant le contraste de viscosité sur l'axe des ordonnées par le nombre de Boussinesq. Lorsque la particule est fortement dégonflée, on retrouve la transition de forme observée pour une vésicule de même volume réduit. La viscosité surfacique de cisaillement joue alors un rôle stabilisateur comme on a pu le voir pour une goutte à interface visqueuse. Lorsque cette viscosité augmente, l'angle d'inclinaison du polymersome diminue, celui-ci est donc moins aligné avec la direction d'élongation principale de l'écoulement, donc moins étiré, ce qui a pour effet de stabiliser la forme oblate. Ainsi, on observe une dépendance du nombre capillaire critique de transition d'une forme prolata à une forme oblate. Par ailleurs, une dynamique de *trembling* apparaît pour une certaine gamme de valeurs du nombre de Boussinesq intermédiaire entre la zone d'existence de la forme prolata et de la forme oblate comme forme stationnaire.

Une première perspective serait d'étudier la présence de dynamiques telles qu'observées pour une vésicule de forme initiale prolata avec un contraste de viscosité important et une valeur de  $Ca \gg 1$  [FM12]. Les auteurs observent par exemple l'apparition d'un mouvement proche du *tumbling* observé pour une vésicule quasi-sphérique mais avec une déformation plus importante qui mène à une forme de S lorsque le grand axe de la vésicule est à un angle  $\theta = \pi/2$ . Dans l'optique d'une comparaison entre les effets de viscosité de membrane et de contraste de viscosité, le diagramme de phase proposé par [FM12] et celui issu des résultats présentés ici (figure 5.16) peuvent être une première source de comparaison et d'analyses.

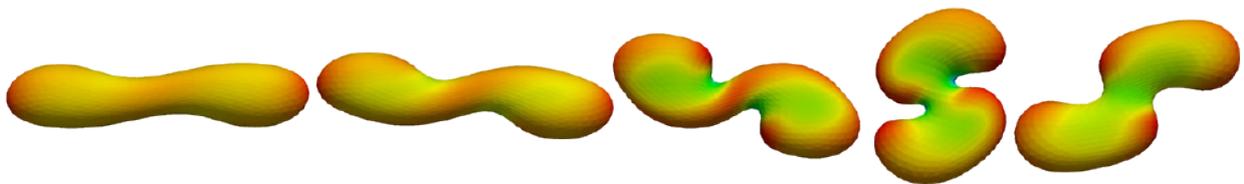


FIGURE 5.18 – Dynamique de *S-tumbling* observée par [FM12] pour une vésicule de dégonflement  $v = 0.60$  plongée dans un écoulement cisailé,  $Ca = 10$  et  $\lambda = 12$ .

Enfin, nous avons observé pour une vésicule immergée dans un écoulement cisailé proche d'une paroi que celle-ci, par l'intermédiaire du film de lubrification, avait une influence sur la dynamique de la vésicule. Celle-ci est régie par l'équilibre entre le mouvement de *tank-treading* de la membrane et le couple généré par l'écoulement cisailé en proche paroi [CM99]. On peut donc imaginer que la

viscosité de cisaillement a une influence sur la dynamique de décollement de la vésicule d'une paroi.

# Conclusion

Ce manuscrit présente les résultats de l'étude de plusieurs objets classiques de la matière molle au cours de la thèse.

La première partie concerne la dynamique d'une goutte immergée dans un écoulement extensionnel. Pour cela, le développement d'une méthode de préconditionnement adaptée a permis d'optimiser les simulations nécessaires à l'étude de l'influence des viscosités interfaciales. Nous avons alors mis en lumière l'influence de la viscosité surfacique de cisaillement et de dilatation sur l'évolution de la forme d'une goutte. Dans le cas particulier où ces deux viscosités sont égales, la forme de la goutte évolue peu et une linéarité entre la valeur de cette viscosité unique et le temps de saturation de la déformation de la goutte a été démontrée pour les deux écoulements étudiés. Enfin, nous évoquons une stratégie permettant, à partir de paramètres accessibles expérimentalement, d'estimer une valeur des nombres de Boussinesq pour les viscosités de cisaillement et de dilatation. Notons qu'une limitation du modèle utilisé ici est l'absence d'effet Marangoni : une perspective attractive serait d'inclure dans le modèle numérique une nouvelle variable décrivant la densité surfacique de surfactants, de lui adjoindre une équation d'advection-diffusion et une loi d'état pour la tension de surface.

La seconde partie se concentre sur la dynamique d'une vésicule immergée dans un écoulement cisailé. Lorsqu'elle est fortement dégonflée, et donc déformable, nous caractérisons la transition observée entre deux familles de forme correspondant aux minima de l'énergie de flexion de la membrane. Nous observons que cette transition est une bifurcation noeud-col. Par la suite, nous étudions l'influence de la proximité d'une paroi sur cette transition. La dynamique de migration loin de la paroi est également déterminée en fonction de la forme de la vésicule. Nous observons l'apparition de nouvelles formes asymétriques lorsque l'intensité de l'écoulement externe est grande.

La troisième partie est consacrée aux polymersomes, vésicules qui présentent une influence non négligeable de la viscosité de cisaillement de leur membrane. Nous présentons les résultats préliminaires d'une étude sur la dépendance à la viscosité membranaire de la dynamique observée sous écoulement cisailé. La construction d'un diagramme de phase pour un fort dégonflement, similaire à ceux déjà connus pour une vésicule composée de phospholipides, fait apparaître

de nouvelles dynamiques qu'il nous semble intéressant d'examiner plus en détail.

Les perspectives ouvertes par ces travaux sont multiples. La migration loin d'une paroi lisse d'une vésicule fortement dégonflée a été décrite dans ce manuscrit. Cependant, on peut imaginer que la rugosité de la paroi, l'adhésion à la paroi ou encore la viscosité de la membrane peuvent avoir une influence sur l'écoulement dans le film de lubrification, et donc sur la stabilité et la dynamique de la vésicule en retour. L'étude de la migration d'un polymersome loin d'une paroi ou encore d'une vésicule adhérant à une surface rugueuse, comme ça peut être le cas dans des veinules par exemple, est donc une piste intéressante à étudier.

La viscosité membranaire observée pour des polymersomes fait apparaître des dynamiques nouvelles en comparaison aux vésicules. Notre étude est préliminaire, et ces nouveaux phénomènes doivent être compris plus en détail et comparés aux résultats connus pour les vésicules dans la même gamme de dégonflement. Par ailleurs, ces travaux sont une contribution supplémentaire à une modélisation mécanique plus réaliste d'un globule rouge, prenant en compte les effets de viscosité interfaciales.

# Bibliographie

- [Abk02] Manouk ABKARIAN. « Dynamique et formes d’enveloppes déformables sous champs externes : vésicules et globules rouges ». Thèse de doct. Grenoble 1, 2002 (cf. p. 101).
- [ALV02] Manouk ABKARIAN, Colette LARTIGUE et Annie VIALLAT. « Tank Treading and Unbinding of Deformable Vesicles in Shear Flow : Determination of the Lift Force ». In : *Physical Review Letters* 88.6 (jan. 2002) (cf. p. 38, 101).
- [AV05] Manouk ABKARIAN et Annie VIALLAT. « Dynamics of Vesicles in a Wall-Bounded Shear Flow ». In : *Biophysical Journal* 89.2 (août 2005), p. 1055-1066 (cf. p. 40, 101).
- [AV08] Manouk ABKARIAN et Annie VIALLAT. « Vesicles and red blood cells in shear flow ». In : *Soft Matter* 4.4 (2008), p. 653-657 (cf. p. 38).
- [AW79] SK AGRAWAL et DT WASAN. « The effect of interfacial viscosities on the motion of drops and bubbles ». In : *The Chemical Engineering Journal* 18.2 (1979), p. 215-223 (cf. p. 32, 72).
- [Ang+92] MI ANGELOVA, S SOLÉAU, Ph MÉLÉARD et al. « Preparation of giant vesicles by external AC electric fields. Kinetics and applications ». In : *Trends in Colloid and Interface Science VI*. Springer, 1992, p. 127-131 (cf. p. 23).
- [BGN15] John W. BARRETT, Harald GARCKE et Robert NÜRNBERG. « Numerical computations of the dynamics of fluidic membranes and vesicles ». In : *Physical Review E* 92.5 (2015), p. 052704 (cf. p. 44).
- [Bar16] Dominique BARTHES-BIESEL. « Motion and deformation of elastic capsules and vesicles in flow ». In : *Annual Review of fluid mechanics* 48 (2016), p. 25-52 (cf. p. 18).
- [BA73] Dominique BARTHES-BIESEL et A ACRIVOS. « Deformation and burst of a liquid droplet freely suspended in a linear shear field ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 61.1 (1973), p. 1-22 (cf. p. 30).
- [BAM06] Ivan B. BAZHLEKOV, Patrick D. ANDERSON et Han E.H. MEIJER. « Numerical investigation of the effect of insoluble surfactants on drop deformation and breakup in simple shear flow ». In : *Journal of Colloid and Interface Science* 298.1 (2006), p. 369-394 (cf. p. 92).

- [BL86a] BJ BENTLEY et L Gary LEAL. « An experimental investigation of drop deformation and breakup in steady, two-dimensional linear flows ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 167 (1986), p. 241-283 (cf. p. 30, 31, 92).
- [BL86b] BJ BENTLEY et LG LEAL. « A computer-controlled four-roll mill for investigations of particle and drop dynamics in two-dimensional linear shear flows ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 167 (1986), p. 219-240 (cf. p. 92).
- [BM03] T BIBEN et C MISBAH. « Tumbling of vesicles under shear flow within an advected-field approach ». In : *Physical Review E* 67.3 (2003), p. 031908 (cf. p. 44).
- [BFM11] Thierry BIBEN, Alexander FARUTIN et Chaouqi MISBAH. « Three-dimensional vesicles under shear flow : Numerical study of dynamics and phase diagram ». In : *Phys. Rev. E* 83 (3 mar. 2011), p. 031921 (cf. p. 45, 147).
- [BCP99] Jérôme BIBETTE, F Leal CALDERON et P POULIN. « Emulsions : basic principles ». In : *Reports on Progress in Physics* 62.6 (1999), p. 969 (cf. p. 69).
- [Bla71] J.R. BLAKE. « A note on the image system for a stokeslet in a no-slip boundary ». In : *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* 70 (1971), p. 303-310 (cf. p. 47, 103).
- [BCL02] Jerzy BŁAWZDZIEWICZ, Vittorio CRISTINI et Michael LOEWENBERG. « Critical behavior of drops in linear flows. I. Phenomenological theory for drop dynamics near critical stationary states ». In : *Physics of Fluids* 14.8 (2002), p. 2709-2718 (cf. p. 31).
- [BLJ11] G. BOEDEC, M. LEONETTI et M. JAEGER. « 3D Vesicle dynamics simulations with a linearly triangulated surface ». In : *J. Comp. Phys.* 230 (2011), p. 1020-1034 (cf. p. 45, 60).
- [BLJ17] G. BOEDEC, M. LEONETTI et M. JAEGER. « Isogeometric FEM-BEM simulations of drop, capsule and vesicle dynamics in Stokes flow ». In : *Jour. Comp. Phys.* (2017) (cf. p. 18, 45, 46, 53, 55, 60).
- [BJL12] Gwenn BOEDEC, Marc JAEGER et Marc LEONETTI. « Settling of a vesicle in the limit of quasispherical shapes ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 690 (2012), p. 227-261 (cf. p. 25).
- [Boh+99] BOHDANA M. DISCHER, YOU-YEON WON, DAVID S. EGE et al. « Polymersomes : tough vesicles made from diblock copolymers ». In : *Science* 284 (14 mai 1999), p. 1143-1145 (cf. p. 41).
- [Bou13] MJ BOUSSINESQ. « Sur l'existence d'une viscosité superficielle, dans la mince couche de transition séparant un liquide d'un autre fluide contigu ». In : *Ann. Chim. Phys* 29 (1913), p. 349-357 (cf. p. 29).

- [Bre61] Howard BRENNER. « The slow motion of a sphere through a viscous fluid towards a plane surface ». In : *Chemical Engineering Science* 16.3 (déc. 1961), p. 242-251 (cf. p. 116).
- [BL75] F BROCHARD et JF LENNON. « Frequency spectrum of the flicker phenomenon in erythrocytes ». In : *Journal de Physique* 36.11 (1975), p. 1035-1047 (cf. p. 18).
- [Bru89] R.A. BRUIJN, DE. « Deformation and breakup of drops in simple shear flows ». English. Thèse de doct. Department of Applied Physics, 1989 (cf. p. 23).
- [Bru+14] Matthias BRUST, Othmane AOUANE, Marine THIÉBAUD et al. « The plasma protein fibrinogen stabilizes clusters of red blood cells in microcapillary flows ». In : *Scientific reports* 4 (2014), p. 4348 (cf. p. 22).
- [Bur+12] Jennie M BURNS, Xiaoxi YANG, Omid FOROUZAN et al. « Artificial microvascular network : a new tool for measuring rheologic properties of stored red blood cells ». In : *Transfusion* 52.5 (2012), p. 1010-1023 (cf. p. 21).
- [C B77] H. Winet C. BRENNEN. « Fluid mechanics of propulsion by cilia and flagella ». In : *Annual Review of Fluid Mechanics* 9 (1977), p. 339-398 (cf. p. 48).
- [Cal+08] N. CALLENS, C. MINETTI, G. COUPIER et al. « Hydrodynamic lift of vesicles under shear flow in microgravity ». In : *EPL (Europhysics Letters)* 83.2 (juil. 2008), p. 24002 (cf. p. 40, 101).
- [Can70] P.B. CANHAM. « The minimum energy of bending as a possible explanation of the biconcave shape of the human red blood cell ». In : *Journal of Theoretical Biology* 26.1 (jan. 1970), p. 61-81 (cf. p. 35, 54).
- [CM99] Isabelle CANTAT et Chaouqi MISBAH. « Lift Force and Dynamical Unbinding of Adhering Vesicles under Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 83.4 (juil. 1999), p. 880-883 (cf. p. 40, 101, 111, 113-115, 120, 147).
- [COS00] Fehmi CIRAK, Michael ORTIZ et Peter SCHRÖDER. « Subdivision surfaces : a new paradigm for thin-shell finite-element analysis ». In : *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 47.12 (2000), p. 2039-2072 (cf. p. 45, 51).
- [Cor+98] Jeroen JLM CORNELISSEN, Matthias FISCHER, Nico AJM SOMMERDIJK et al. « Helical superstructures from charged poly (styrene)-poly (isocyanodipeptide) block copolymers ». In : *Science* 280.5368 (1998), p. 1427-1430 (cf. p. 41).
- [Cou+12] Gwennou COUPIER, Alexander FARUTIN, Christophe MINETTI et al. « Shape Diagram of Vesicles in Poiseuille Flow ». In : *Physical Review Letters* 108.17 (avr. 2012) (cf. p. 37).

- [Cox69] RG COX. « The deformation of a drop in a general time-dependent fluid flow ». In : *Journal of fluid mechanics* 37.3 (1969), p. 601-623 (cf. p. 30, 31).
- [CBL98] Vittorio CRISTINI, Jerzy BŁAWZDZIEWICZ et Michael LOEWENBERG. « Drop breakup in three-dimensional viscous flows ». In : *Physics of Fluids* 10.8 (1998), p. 1781-1783 (cf. p. 31).
- [CBL01] Vittorio CRISTINI, Jerzy BŁAWZDZIEWICZ et Michael LOEWENBERG. « An adaptive mesh algorithm for evolving surfaces : simulations of drop breakup and coalescence ». In : *Journal of Computational Physics* 168.2 (2001), p. 445-463 (cf. p. 31).
- [Cri+03] Vittorio CRISTINI, S GUIDO, A ALFANI et al. « Drop breakup and fragment size distribution in shear flow ». In : *Journal of Rheology* 47.5 (2003), p. 1283-1298 (cf. p. 30, 31).
- [DVM09] Gerrit DANKER, Petia M VLAHOVSKA et Chaouqi MISBAH. « Vesicles in Poiseuille flow ». In : *Physical review letters* 102.14 (2009), p. 148102 (cf. p. 37).
- [De 93] RA DE BRUIJN. « Tipstreaming of drops in simple shear flows ». In : *Chemical engineering science* 48.2 (1993), p. 277-284 (cf. p. 31, 69).
- [De +14] Clément DE LOUBENS, Julien DESCHAMPS, Marc GEORGELIN et al. « Mechanical characterization of cross-linked serum albumin microcapsules ». In : *Soft matter* 10.25 (2014), p. 4561-4568 (cf. p. 18).
- [DKS09] J. DESCHAMPS, V. KANTSLER et V. STEINBERG. « Phase Diagram of Single Vesicle Dynamical States in Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 102.11 (17 mar. 2009) (cf. p. 38, 39, 42, 126, 140, 147).
- [Dim+99] R DIMOVA, C DIETRICH, A HADJIISKY et al. « Falling ball viscosimetry of giant vesicle membranes : finite-size effects ». In : *The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems* 12.4 (1999), p. 589-598 (cf. p. 35).
- [Dim+02] R DIMOVA, U SEIFERT, B POULIGNY et al. « Hyperviscous diblock copolymer vesicles ». In : *The European Physical Journal E* 7.3 (2002), p. 241-250 (cf. p. 18, 41).
- [Dim+06] Rumiana DIMOVA, Said ARANDA, Natalya BEZLYEPKINA et al. « A practical guide to giant vesicles. Probing the membrane nanoregime via optical microscopy ». In : *Journal of Physics : Condensed Matter* 18.28 (2006), S1151 (cf. p. 33).
- [DA06] Dennis E DISCHER et Fariyal AHMED. « Polymersomes ». In : *Annu. Rev. Biomed. Eng.* 8 (2006), p. 323-341 (cf. p. 18).
- [Dör82] M DÖRING. « Ink-jet printing ». In : *Philips Tech. Rev* 40.7 (1982), p. 192-198 (cf. p. 23).

- [ETS01] Charles D EGGLETON, Tse-Min TSAI et Kathleen J STEBE. « Tip streaming from a drop in the presence of surfactants ». In : *Physical review letters* 87.4 (2001), p. 048302 (cf. p. 31).
- [EN87] Evan EVANS et David NEEDHAM. « Physical properties of surfactant bilayer membranes : thermal transitions, elasticity, rigidity, cohesion and colloidal interactions ». In : *Journal of Physical Chemistry* 91.16 (1987), p. 4219-4228 (cf. p. 33).
- [FL31] Robin FÅHRÆUS et Torsten LINDQVIST. « The viscosity of the blood in narrow capillary tubes ». In : *American Journal of Physiology–Legacy Content* 96.3 (1931), p. 562-568 (cf. p. 20).
- [FBM14] Alexander FARUTIN, Thierry BIBEN et Chaouqi MISBAH. « 3D numerical simulations of vesicle and inextensible capsule dynamics ». In : *Journal of Computational Physics* 275 (oct. 2014), p. 539-568 (cf. p. 38, 45, 49, 66).
- [FM12] Alexander FARUTIN et Chaouqi MISBAH. « Squaring, Parity Breaking, and S Tumbling of Vesicles under Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 109.24 (déc. 2012) (cf. p. 123, 145, 147).
- [FM13] Alexander FARUTIN et Chaouqi MISBAH. « Analytical and numerical study of three main migration laws for vesicles under flow ». In : *Physical review letters* 110.10 (2013), p. 108104 (cf. p. 101).
- [FFG12] Dmitry A FEDOSOV, Julia FORNLEITNER et Gerhard GOMPPER. « Margination of white blood cells in microcapillary flow ». In : *Physical review letters* 108.2 (2012), p. 028104 (cf. p. 22).
- [FNG14] Dmitry A FEDOSOV, Hiroshi NOGUCHI et Gerhard GOMPPER. « Multiscale modeling of blood flow : from single cells to blood rheology ». In : *Biomechanics and modeling in mechanobiology* 13.2 (2014), p. 239-258 (cf. p. 21).
- [Fed+11] Dmitry A FEDOSOV, Wenxiao PAN, Bruce CASWELL et al. « Predicting human blood viscosity in silico ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108.29 (2011), p. 11772-11777 (cf. p. 22).
- [Feh69] E. FEHLBERG. *Low-order classical Runge-Kutta formulas with step size control and their application to some heat transfer problems*. Rapp. tech. NASA, 1969 (cf. p. 62).
- [FK06] Feng FENG et William S. KLUG. « Finite Element Modeling of Lipid Bilayer Membranes ». In : *J. Comput. Phys.* 220.1 (déc. 2006), p. 394-408 (cf. p. 45).
- [Flu80a] Raymond W FLUMERFELT. « Effects of dynamic interfacial properties on drop deformation and orientation in shear and extensional flow fields ». In : *Journal of Colloid and Interface Science* 76.2 (août 1980), p. 330-349 (cf. p. 31, 42, 80, 81, 126).

- [Flu80b] Raymond W FLUMERFELT. « Effects of dynamic interfacial properties on drop deformation and orientation in shear and extensional flow fields ». In : *Journal of Colloid and Interface Science* 76.2 (1980), p. 330-349 (cf. p. [72](#), [77](#), [79](#), [80](#), [82](#)).
- [GCB67a] A.J. GOLDMAN, R.G. COX et H. BRENNER. « Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall—I Motion through a quiescent fluid ». In : *Chemical Engineering Science* 22.4 (avr. 1967), p. 637-651 (cf. p. [115](#), [116](#), [118](#)).
- [GCB67b] A.J. GOLDMAN, R.G. COX et H. BRENNER. « Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall—II Couette flow ». In : *Chemical Engineering Science* 22.4 (avr. 1967), p. 653-660 (cf. p. [115](#), [116](#)).
- [GM62] HL GOLDSMITH et SG MASON. « The flow of suspensions through tubes. I. Single spheres, rods, and discs ». In : *Journal of Colloid Science* 17.5 (1962), p. 448-476 (cf. p. [101](#)).
- [Gou+16] J. GOUNLEY, G. BOEDÉC, M. JAEGER et al. « Influence of surface viscosity on droplets in shear flow ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 791 (mar. 2016), p. 464-494 (cf. p. [31](#), [42](#), [72](#), [81](#), [92](#), [126](#), [136](#)).
- [Gra82] Harold P GRACE. « Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems ». In : *Chemical Engineering Communications* 14.3-6 (1982), p. 225-277 (cf. p. [31](#), [92](#)).
- [GG04] S. GUIDO et F. GRECO. « DYNAMICS OF A LIQUID DROP IN A FLOWING IMMISCIBLE LIQUID ». In : *Rheology Reviews* (2004), p. 99-142 (cf. p. [68](#)).
- [GP10] S. GUIDO et V. PREZIOSI. « Droplet deformation under confined Poiseuille flow ». In : *Advances in Colloid and Interface Science* (2010), p. 89-101 (cf. p. [68](#)).
- [Gun+11] Deniz Z GUNES, Matthieu POUZOT, Martine ROUVET et al. « Tuneable thickness barriers for composite o/w and w/o capsules, films, and their decoration with particles ». In : *Soft Matter* 7.19 (2011), p. 9206-9215 (cf. p. [17](#)).
- [HAD14] Luca HELTAI, Marino ARROYO et Antonio DESIMONE. « Nonsingular isogeometric boundary element method for Stokes flows in 3D ». In : *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 268.0 (2014), p. 514-539 (cf. p. [45](#)).
- [Hig79] J.J.L HIGDON. « The hydrodynamics of flagellar propulsion : helical waves ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 94.2 (1979), p. 331-351 (cf. p. [21](#)).

- [HA79] EJ HINCH et A ACRIVOS. « Steady long slender droplets in two-dimensional straining motion ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 91.3 (1979), p. 401-414 (cf. p. 30).
- [HN81] Cyril W HIRT et Billy D NICHOLS. « Volume of fluid (VOF) method for the dynamics of free boundaries ». In : *Journal of computational physics* 39.1 (1981), p. 201-225 (cf. p. 43).
- [Hon+13] Aurelia R HONERKAMP-SMITH, Francis G WOODHOUSE, Vasily KANTSLER et al. « Membrane viscosity determined from shear-driven flow in giant vesicles ». In : *Physical review letters* 111.3 (2013), p. 038103 (cf. p. 42, 126).
- [HCS12] Wei-Xi HUANG, Cheong Bong CHANG et Hyung Jin SUNG. « Three-dimensional simulation of elastic capsules in shear flow by the penalty immersed boundary method ». In : *Journal of Computational Physics* 231.8 (2012), p. 3340-3364 (cf. p. 45).
- [HCB05] T.J.R. HUGHES, J.A. COTTRELL et Y. BAZILEVS. « Isogeometric analysis : CAD, finite elements, NURBS, exact geometry and mesh refinement ». In : *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 194.39-41 (2005), p. 4135-4195 (cf. p. 45).
- [Jar+95] Marija JARIĆ, Udo SEIFERT, Wolfgang WINTZ et al. « Vesicular instabilities : The prolate-to-oblate transition and other shape instabilities of fluid bilayer membranes ». In : *Physical Review E* 52.6 (1995), p. 6623 (cf. p. 110).
- [JVA15] A.A. JONEIDI, C.V. VERHOESEL et P.D. ANDERSON. « Isogeometric boundary integral analysis of drops and inextensible membranes in isoviscous flow ». In : *Computers and Fluids* 109 (2015), p. 49-66 (cf. p. 45).
- [KS05] Vasily KANTSLER et Victor STEINBERG. « Orientation and Dynamics of a Vesicle in Tank-Treading Motion in Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 95.25 (12 déc. 2005) (cf. p. 38, 100).
- [KS06] Vasily KANTSLER et Victor STEINBERG. « Transition to Tumbling and Two Regimes of Tumbling Motion of a Vesicle in Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 96.3 (24 jan. 2006) (cf. p. 38).
- [KBM09] Badr KAOUI, George BIROS et Chaouqi MISBAH. « Why do red blood cells have asymmetric shapes even in a symmetric flow ? » In : *Physical review letters* 103.18 (2009), p. 188101 (cf. p. 22).
- [KFM09] Badr KAOUI, Alexander FARUTIN et Chaouqi MISBAH. « Vesicles under simple shear flow : Elucidating the role of relevant control parameters ». In : *Physical Review E* 80.6 (9 déc. 2009) (cf. p. 39, 42, 126, 140).

- [KS82] Stuart R. KELLER et Richard SKALAK. « Motion of a tank-treading ellipsoidal particle in a shear flow ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 120 (1982), p. 27-47 (cf. p. [38](#), [39](#), [42](#), [126](#), [127](#), [129-133](#), [141](#)).
- [KPS94] MR KENNEDY, C POZRIKIDIS et R SKALAK. « Motion and deformation of liquid drops, and the rheology of dilute emulsions in simple shear flow ». In : *Computers & fluids* 23.2 (1994), p. 251-278 (cf. p. [30](#)).
- [KL10] Yongsam KIM et Ming-Chih LAI. « Simulating the dynamics of inextensible vesicles by the penalty immersed boundary method ». In : *Journal of Computational Physics* 229.12 (2010), p. 4840-4853 (cf. p. [44](#)).
- [Kra+96] Martin KRAUS, Wolfgang WINTZ, Udo SEIFERT et al. « Fluid vesicles in shear flow ». In : *Physical review letters* 77.17 (1996), p. 3685 (cf. p. [38](#), [44](#), [103](#)).
- [Lam+01] Antonio LAMURA, Gerhard GOMPPER, Thomas IHLE et al. « Multi-particle collision dynamics : Flow around a circular and a square cylinder ». In : *EPL (Europhysics Letters)* 56.3 (2001), p. 319 (cf. p. [126](#)).
- [Lan86] JS LANGER. « Models of pattern formation in first-order phase transitions ». In : *Directions in Condensed Matter Physics : Memorial Volume in Honor of Shang-Keng Ma*. World Scientific, 1986, p. 165-186 (cf. p. [43](#)).
- [Le10] Duc-Vinh LE. « Subdivision elements for large deformation of liquid capsules enclosed by thin shells ». In : *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 199.37-40 (2010), p. 2622-2632 (cf. p. [45](#)).
- [LW11] Duc-Vinh LE et Sum Thai WONG. « A front-tracking method with Catmull-Clark subdivision surfaces for studying liquid capsules enclosed by thin shells in shear flow ». In : *Journal of Computational Physics* 230.9 (2011), p. 3538-3555 (cf. p. [45](#)).
- [LTV07] VV LEBEDEV, KS TURITSYN et SS VERGELES. « Dynamics of nearly spherical vesicles in an external flow ». In : *Physical review letters* 99.21 (2007), p. 218101 (cf. p. [42](#), [126](#)).
- [LF12] Jung Seok LEE et Jan FEIJEN. « Polymersomes for drug delivery : design, formation and characterization ». In : *Journal of controlled release* 161.2 (2012), p. 473-483 (cf. p. [40](#)).
- [LK69] VG LEVICH et VS KRYLOV. « Surface-tension-driven phenomena ». In : *Annual Review of Fluid Mechanics* 1.1 (1969), p. 293-316 (cf. p. [28](#), [31](#)).
- [LRR00] Jie LI, Yuriko Y RENARDY et Michael RENARDY. « Numerical simulation of breakup of a viscous drop in simple shear flow through a volume-of-fluid method ». In : *Physics of Fluids* 12.2 (2000), p. 269-282 (cf. p. [30](#)).

- [Loo87] Charles Teorell LOOP. « Smooth Subdivision Surfaces Based on Triangles ». Mém. de mast. University of Utah, 1987 (cf. p. [50](#), [65](#)).
- [Lor+00] B LORZ, R SIMSON, J NARDI et al. « Weakly adhering vesicles in shear flow : Tanktreading and anomalous lift force ». In : *EPL (Europhysics Letters)* 51.4 (2000), p. 468 (cf. p. [101](#)).
- [Lou+15] C. de LOUBENS, J. DESCHAMPS, G. BOEDEC et al. « Stretching of capsules in an elongation flow, a route to constitutive law ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 767 (mar. 2015) (cf. p. [18](#), [97](#)).
- [Lou+16] C. de LOUBENS, J. DESCHAMPS, F. EDWARDS-LEVY et al. « Tank-treading of microcapsules in shear flow ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 789 (2016), p. 750-767 (cf. p. [38](#), [100](#)).
- [LSB18] Zheng Yuan LUO, Xing Long SHANG et Bo Feng BAI. « Marangoni effect on the motion of a droplet covered with insoluble surfactant in a square microchannel ». In : *Physics of Fluids* 30.7 (2018), p. 077101 (cf. p. [71](#)).
- [MK08] Lin MA et William S. KLUG. « Viscous regularization and r-adaptive remeshing for finite element analysis of lipid membrane mechanics ». In : *Journal of Computational Physics* 227.11 (2008), p. 5816-5835 (cf. p. [45](#)).
- [Mad+06] Atmane MADENE, Muriel JACQUOT, Joel SCHER et al. « Flavour encapsulation and controlled release—a review ». In : *International journal of food science & technology* 41.1 (2006), p. 1-21 (cf. p. [17](#)).
- [Mcf10] Greg M MCFARQUHAR. « Raindrop size distribution and evolution ». In : *Rainfall : State of the Science* 191 (2010) (cf. p. [22](#)).
- [MGN14] S. MENDEZ, E. GIBAUD et F. NICOD. « An unstructured solver for simulations of deformable particles in flows at arbitrary Reynolds numbers ». In : *Journal of Computational Physics* 256 (2014), p. 465-483 (cf. p. [45](#)).
- [Meß+09] Sebastian MESSLINGER, Benjamin SCHMIDT, Hiroshi NOGUCHI et al. « Dynamical regimes and hydrodynamic lift of viscous vesicles under shear ». In : *Physical Review E* 80.1 (juil. 2009) (cf. p. [101](#)).
- [MCM75] T MIKAMI, RG COX et SG MASON. « Breakup of extending liquid threads ». In : *International Journal of Multiphase Flow* 2.2 (1975), p. 113-138 (cf. p. [31](#)).
- [Mis06] Chaouqi MISBAH. « Vacillating Breathing and Tumbling of Vesicles under Shear Flow ». In : *Phys. Rev. Lett.* 96 (2 jan. 2006), p. 028104 (cf. p. [38](#), [39](#)).
- [Nar18] Vivek NARSIMHAN. « The effect of surface viscosity on the translational speed of droplets ». In : *Physics of Fluids* 30.8 (2018), p. 081703 (cf. p. [81](#)).

- [Nav99] Yiftah NAVOT. « Critical behavior of drop breakup in axisymmetric viscous flow ». In : *Physics of Fluids* 11.5 (1999), p. 990-996 (cf. p. 31).
- [NG04] Hiroshi NOGUCHI et Gerhard GOMPPER. « Fluid Vesicles with Viscous Membranes in Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 93.25 (13 déc. 2004) (cf. p. 42, 44, 100, 124, 126, 136).
- [NG05] Hiroshi NOGUCHI et Gerhard GOMPPER. « Dynamics of fluid vesicles in shear flow : Effect of membrane viscosity and thermal fluctuations ». In : *Physical Review E* 72.1 (1<sup>er</sup> juil. 2005) (cf. p. 42, 100, 124, 126).
- [NG07] Hiroshi NOGUCHI et Gerhard GOMPPER. « Swinging and Tumbling of Fluid Vesicles in Shear Flow ». In : *Physical Review Letters* 98.12 (21 mar. 2007) (cf. p. 42, 126).
- [NL04] Vincent NOIREAUX et Albert LIBCHABER. « A vesicle bioreactor as a step toward an artificial cell assembly ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 101.51 (2004), p. 17669-17674 (cf. p. 23).
- [Obe97] Julian OBERDISSE. « Formation spontanée de vésicules dans un système amphiphile chargé ». Thèse de doct. Université Montpellier II-Sciences et Techniques du Languedoc, 1997 (cf. p. 35).
- [Oll97] Piero OLLA. « The Lift on a Tank-Treading Ellipsoidal Cell in a Shear Flow ». In : *Journal de Physique II* 7.10 (oct. 1997), p. 1533-1540 (cf. p. 101).
- [Ort+05] Vanessa ORTIZ, Steven O NIELSEN, Dennis E DISCHER et al. « Dissipative particle dynamics simulations of polymersomes ». In : *The Journal of Physical Chemistry B* 109.37 (2005), p. 17708-17714 (cf. p. 41).
- [Pes02] Charles S PESKIN. « The immersed boundary method ». In : *Acta numerica* 11 (2002), p. 479-517 (cf. p. 43).
- [Pow10] Thomas R. POWERS. « Dynamics of filaments and membranes in a viscous fluid ». In : *Reviews of Modern Physics* 82.2 (mai 2010), p. 1607-1631 (cf. p. 56, 65).
- [Poz92] C POZRIKIDIS. *Boundary integral and singularity methods for linearized viscous flow*. Cambridge [England] ; New York : Cambridge University Press, 1992 (cf. p. 46, 48).
- [Poz94] C. POZRIKIDIS. « Effects of surface viscosity on the finite deformation of a liquid drop and the rheology of dilute emulsions in simple shearing flow ». In : *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 51.2 (fév. 1994), p. 161-178 (cf. p. 32, 72, 126).
- [Poz03] Constantine POZRIKIDIS. *Modeling and simulation of capsules and biological cells*. CRC Press, 2003 (cf. p. 18).

- [PNG92] AR PRIES, D NEUHAUS et P GAEHTGENS. « Blood viscosity in tube flow : dependence on diameter and hematocrit ». In : *American Journal of Physiology-Heart and Circulatory Physiology* 263.6 (1992), H1770-H1778 (cf. p. 20).
- [QS17] Qin M QI et Eric SG SHAQFEH. « Theory to predict particle migration and margination in the pressure-driven channel flow of blood ». In : *Physical Review Fluids* 2.9 (2017), p. 093102 (cf. p. 22).
- [Rah+15] Abtin RAHIMIAN, Shravan K. VEERAPANENI, Denis ZORIN et al. « Boundary Integral Method for the Flow of Vesicles with Viscosity Contrast in Three Dimensions ». In : *J. Comput. Phys.* 298.C (oct. 2015), p. 766-786 (cf. p. 45).
- [Ral84] J M RALLISON. « The Deformation of Small Viscous Drops and Bubbles in Shear Flows ». In : *Annual Review of Fluid Mechanics* 16.1 (1984), p. 45-66 (cf. p. 68).
- [RA78] JM RALLISON et Andrias ACRIVOS. « A numerical study of the deformation and burst of a viscous drop in an extensional flow ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 89.1 (1978), p. 191-200 (cf. p. 30).
- [RLK10] Francesca RAVERA, Giuseppe LOGLIO et Volodymyr I KOVALCHUK. « Interfacial dilational rheology by oscillating bubble/drop methods ». In : *Current Opinion in Colloid & Interface Science* 15.4 (2010), p. 217-228 (cf. p. 72).
- [RBM04] F. RIOUAL, T. BIBEN et C. MISBAH. « Analytical analysis of a vesicle tumbling under a shear flow ». In : *Physical Review E* 69.6 (15 juin 2004) (cf. p. 38).
- [Rip+04] Marisol RIPOLL, K MUSSAWISADE, RG WINKLER et al. « Low-Reynolds-number hydrodynamics of complex fluids by multi-particle-collision dynamics ». In : *EPL (Europhysics Letters)* 68.1 (2004), p. 106 (cf. p. 126).
- [Rus+91] William Bailey RUSSEL, WB RUSSEL, Dudley A SAVILLE et al. *Colloidal dispersions*. Cambridge university press, 1991 (cf. p. 21).
- [SS86] Youcef SAAD et Martin H. SCHULTZ. « GMRES : A generalized minimal residual algorithm for solving nonsymmetric linear systems ». In : *SIAM Journal on scientific and statistical computing* 7.3 (1986), p. 856-869 (cf. p. 58, 60).
- [Saf76] PG SAFFMAN. « Brownian motion in thin sheets of viscous fluid ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 73.4 (1976), p. 593-602 (cf. p. 35, 41).
- [Sch+11] Jonathan T SCHWALBE, Frederick R PHELAN JR, Petia M VLAHOVSKA et al. « Interfacial effects on droplet dynamics in Poiseuille flow ». In : *Soft Matter* 7.17 (2011), p. 7797-7804 (cf. p. 32, 72).

- [Scr60] L.E. SCRIVEN. « Dynamics of a fluid interface Equation of motion for Newtonian surface fluids ». In : *Chemical Engineering Science* 12.2 (mai 1960), p. 98-108 (cf. p. [29](#), [35](#), [59](#), [71](#), [73](#)).
- [Sei97] Udo SEIFERT. « Configurations of fluid membranes and vesicles ». In : *Advances in physics* 46.1 (1997), p. 13-137 (cf. p. [18](#)).
- [Sei99] Udo SEIFERT. « Hydrodynamic Lift on Bound Vesicles ». In : *Physical Review Letters* 83.4 (juil. 1999), p. 876-879 (cf. p. [40](#), [101](#), [113](#), [120](#)).
- [SBL91] Udo SEIFERT, Karin BERNDL et Reinhard LIPOWSKY. « Shape transformations of vesicles : Phase diagram for spontaneous- curvature and bilayer-coupling models ». In : *Physical Review A* 44.2 (juil. 1991), p. 1182-1202 (cf. p. [23](#), [37](#), [101](#), [102](#), [110](#)).
- [Set99] James Albert SETHIAN. *Level set methods and fast marching methods : evolving interfaces in computational geometry, fluid mechanics, computer vision, and materials science*. T. 3. Cambridge university press, 1999 (cf. p. [43](#)).
- [She+05] Sergey S SHEVKOPLYAS, Tatsuro YOSHIDA, Lance L MUNN et al. « Biomimetic autoseparation of leukocytes from whole blood in a microfluidic device ». In : *Analytical chemistry* 77.3 (2005), p. 933-937 (cf. p. [17](#)).
- [SL91] Jeffrey R. SMART et David T. LEIGHTON. « Measurement of the drift of a droplet due to the presence of a plane ». In : *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics* 3.1 (jan. 1991), p. 21-28 (cf. p. [101](#)).
- [SU07] Kurt A SMITH et William E USPAL. « Shear-driven release of a bud from a multicomponent vesicle ». In : *The Journal of chemical physics* 126.7 (2007), 02B610 (cf. p. [44](#)).
- [SZS14] Andrew P SPANN, Hong ZHAO et Eric SG SHAQFEH. « Loop subdivision surface boundary integral method simulations of vesicles at low reduced volume ratio in shear and extensional flow ». In : *Physics of Fluids* 26.3 (2014), p. 031902 (cf. p. [45](#), [100](#), [109](#), [110](#), [124](#), [147](#)).
- [SQ05] Todd M SQUIRES et Stephen R QUAKE. « Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale ». In : *Reviews of modern physics* 77.3 (2005), p. 977 (cf. p. [17](#)).
- [Sto94] H.A. STONE. « Dynamics of Drop Deformation and Breakup in Viscous Fluids ». In : *Annual Review of Fluid Mechanics* 26 (1994), p. 65-102 (cf. p. [68](#), [92](#)).
- [SL89] H.A. STONE et L.G LEAL. « A Note Concerning Drop Deformation and Breakup in Biaxial Extensional Flows at Low Reynolds Numbers ». In : *JCIS* (1989) (cf. p. [76](#), [86](#), [98](#), [99](#)).

- [SBL86] Howard A STONE, BJ BENTLEY et LG LEAL. « An experimental study of transient effects in the breakup of viscous drops ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 173 (1986), p. 131-158 (cf. p. 30, 71).
- [SL90] Howard A STONE et L Gary LEAL. « The effects of surfactants on drop deformation and breakup ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 220 (1990), p. 161-186 (cf. p. 31).
- [SS01] Sreejith SUKUMARAN et Udo SEIFERT. « Influence of shear flow on vesicles near a wall : A numerical study ». In : *Physical Review E* 64.1 (juin 2001) (cf. p. 40, 101).
- [Tay32] Geoffrey I TAYLOR. « The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid ». In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 138.834 (1932), p. 41-48 (cf. p. 30, 69).
- [Tay34] GI TAYLOR. « The formation of emulsions in definable fields of flow ». In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 146.858 (1934), p. 501-523 (cf. p. 30, 31, 69).
- [Tro+15] R. TROZZO, G. BOEDEC, M. LEONETTI et al. « Axisymmetric Boundary Element Method for vesicles in a capillary ». In : *Journal of Computational Physics* 289 (2015), p. 62-82 (cf. p. 37, 45).
- [Vee+11] Shravan K. VEERAPANENI, Abtin RAHIMIAN, George BIROS et al. « A fast algorithm for simulating vesicle flows in three dimensions ». In : *Journal of Computational Physics* 230.14 (2011), p. 5610-5634 (cf. p. 45).
- [VPM09] Petia M. VLAHOVSKA, Thomas PODGORSKI et Chaouqi MISBAH. « Vesicles and red blood cells in flow : From individual dynamics to rheology ». In : *Comptes Rendus Physique* 10.8 (2009). Complex and biofluids Fluides complexes et biologiques, p. 775-789 (cf. p. 22).
- [VBM13] Petia M VLAHOVSKA, Dominique BARTHES-BIESEL et Chaouqi MISBAH. « Flow dynamics of red blood cells and their biomimetic counterparts ». In : *Comptes Rendus Physique* 14.6 (2013), p. 451-458 (cf. p. 18).
- [VG07] Petia M VLAHOVSKA et Ruben Serral GRACIA. « Dynamics of a viscous vesicle in linear flows ». In : *Physical Review E* 75.1 (2007), p. 016313 (cf. p. 38, 101).
- [WSS74] Lun-Yan WEI, Walter SCHMIDT et John C SLATTERY. « Measurement of the surface dilatational viscosity ». In : *Journal of Colloid and Interface Science* 48.1 (1974), p. 1-9 (cf. p. 32, 72).
- [Whi06] George M WHITESIDES. « The origins and the future of microfluidics ». In : *Nature* 442.7101 (2006), p. 368 (cf. p. 17).

- [Win+05] E.J. WINDHAB, Dressler M., K. FEIGL et al. « Emulsion processing—from single-drop deformation to design of complex processes and products ». In : *Chemical Engineering Science* (2005) (cf. p. 68).
- [WZD02] Yingyuan WU, Alexander Z ZINCHENKO et Robert H DAVIS. « General ellipsoidal model for deformable drops in viscous flows ». In : *Industrial & engineering chemistry research* 41.25 (2002), p. 6270-6278 (cf. p. 31).
- [Xie+17] Kaili XIE, Clement de LOUBENS, Frederic DUBREUIL et al. « Interfacial rheological properties of self-assembling biopolymer microcapsules ». In : *Soft matter* 13.36 (2017), p. 6208-6217 (cf. p. 17).
- [Yag+06] Paul YAGER, Thayne EDWARDS, Elain FU et al. « Microfluidic diagnostic technologies for global public health ». In : *Nature* 442.7101 (2006), p. 412 (cf. p. 23).
- [YB12] Alireza YAZDANI et Prosenjit BAGCHI. « Three-dimensional numerical simulation of vesicle dynamics using a front-tracking method ». In : *Phys. Rev. E* 85 (5 mai 2012), p. 056308 (cf. p. 45, 136).
- [YD98] C YBERT et J-M DI MEGLIO. « Ascending air bubbles in protein solutions ». In : *The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems* 4.3 (1998), p. 313-319 (cf. p. 69).
- [Zha+10] Hong ZHAO, Amir H.G. ISFAHANI, Luke N. OLSON et al. « A spectral boundary integral method for flowing blood cells ». In : *Journal of Computational Physics* 229.10 (2010), p. 3726-3744 (cf. p. 45).
- [ZS11] Hong ZHAO et Eric SG SHAQFEH. « The dynamics of a vesicle in simple shear flow ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 674 (2011), p. 578-604 (cf. p. 136).
- [ZSS11] Hong ZHAO, Andrew P. SPANN et Eric S. G. SHAQFEH. « The dynamics of a vesicle in a wall-bound shear flow ». In : *Physics of Fluids* 23.12 (2011), p. 121901 (cf. p. 39, 44, 45, 49, 100, 101, 119, 121, 136).
- [ZP95] Hua ZHOU et C POZRIKIDIS. « Deformation of liquid capsules with incompressible interfaces in simple shear flow ». In : *Journal of Fluid Mechanics* 283 (1995), p. 175-200 (cf. p. 44).