

Modélisation numérique de problèmes hydrodynamiques aux frontières libres

Julien Beaucourt

▶ **To cite this version:**

Julien Beaucourt. Modélisation numérique de problèmes hydrodynamiques aux frontières libres. Modélisation et simulation. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2005. Français. NNT : . tel-00009749

HAL Id: tel-00009749
https://theses.hal.science/tel-00009749

Submitted on 13 Jul 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Joseph Fourier
Laboratoire de Spectrométrie Physique

THÈSE

pour obtenir le titre de

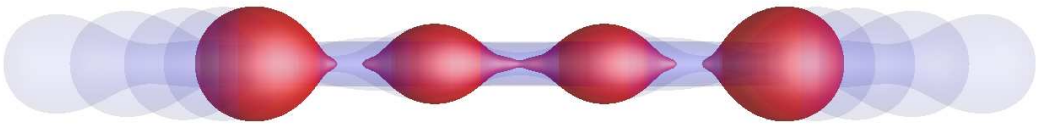
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER

Spécialité : Physique

Présentée par :

Julien BEAUCOURT

MODELISATION NUMERIQUE DE PROBLEMES HYDRODYNAMIQUES AUX FRONTIERES LIBRES



Soutenue publiquement le 21 juin 2005 devant le jury composé de :

M.	Prost Jacques	Président du jury
Mme	Barthès-Biesel Dominique	Rapporteur
M.	Bocquet Lydéric	Rapporteur
M.	Fourcade Bertrand	Examinateur
M.	Kassner Klaus	Examinateur
M.	Biben Thierry	Directeur de thèse

Le projet est toujours infiniment plus beau que sa réalisation.

Christa Wolf, Trame d'enfance

Table des matières

Introduction **3**

I Aspects numériques **7**

1 Modélisation numérique **9**
1.1 Formulation générale du problème 10
1.2 Approche Lagrangienne : suivi d'interface 12
1.2.1 Intégrales de frontières (BEM) 12
1.2.2 Application au cas newtonien 14
1.2.3 Avantages et inconvénients 14
1.3 Approche Eulérienne : capture d'interface 14
1.3.1 La méthode du champ de phase 16
1.3.2 Principe de base 16
1.3.3 Avantages et inconvénients 19

2 Algorithme de résolution **23**
2.1 Discrétisation spatiale 23
2.1.1 Maillage 23
2.1.2 Discrétisation des opérateurs différentiels 24
2.2 Discrétisation temporelle 28
2.3 Algorithme de résolution : champ de phase et hydrodynamique . 29
2.3.1 Equation du champ de phase : cas non conservatif 29
2.3.2 Equation du champ de phase : cas conservatif 30
2.3.3 Equation hydrodynamique 30

II Elongation et rupture de gouttes viscoélastiques **33**

1 Rhéologie des solutions de polymères **35**
1.1 Les polymères gaussiens 35
1.2 Les solutions de polymères 38
1.2.1 Les fonctions rhéologiques 38
1.2.2 Phénoménologie 40

1.3 Le modèle d'Oldroyd B 44
1.3.1 Approche macrocopique 45
1.3.2 Approche microscopique 46
1.3.3 Prédictions rhéologiques 50
1.4 Vers une complexité croissante des modèles 51
1.4.1 Dérivées convective inférieure et de Jaumann 51
1.4.2 Développements perturbatifs 53
1.4.3 Réponse non linéaire des chaînes élastiques 53

2 Elongation de gouttes viscoélastiques 55
2.1 Modèle numérique 56
2.1.1 Mise en équation 56
2.1.2 Les paramètres du modèle 57
2.2 Le cas newtonien 58
2.2.1 Approches expérimentales 58
2.2.2 Approches analytiques et numériques 61
2.2.3 Confrontation directe avec les modèles analytiques 63
2.3 Introduction des effets viscoélastiques 65
2.3.1 Déformation à rapport de viscosités constant 68
2.3.2 Inversion de courbure le long de l'axe d'élongation 71
2.3.3 Le rôle des contraintes viscoélastiques 73

3 Vers la rupture 77
3.1 Perte de stabilité et rupture en élongation 77
3.1.1 Brève revue bibliographique 78
3.1.2 Seuils de stabilité en terme de champ de phase 80
3.1.3 Au-delà du seuil 82
3.1.4 Discussion 85
3.2 L'instabilité de Rayleigh-Tomotika en régime viscoélastique . . . 87

III Dynamique de vésicules 95

1 Dynamique de vésicules sous cisaillement 97
1.1 Description mécanique des vésicules 98
1.1.1 Les molécules amphiphiles 98
1.1.2 Les différents modes de déformation et leurs importances relatives 100
1.1.3 Lois de conservation 106
1.1.4 Morphologies d'équilibre 109
1.2 Equations dynamiques 110
1.3 Etude sous cisaillement 115
1.3.1 Le modèle de Keller & Skalak 116
1.3.2 Etude numérique 119

1.3.3 Effets du confinement entre deux parois rigides 124

2 Force de portance au voisinage d'un substrat déformable 129
2.1 Symétrie des équations de Stokes 130
2.2 Modélisation du système 131
2.2.1 Approche analytique : linéarisation des équations de Lamé 131
2.2.2 Approche numérique 133
2.3 Dynamique d'un cylindre au voisinage du substrat déformable . 135
2.3.1 Calcul analytique perturbatif 135
2.3.2 Résultats numériques 138
2.4 Le cas des vésicules 145

3 Biomimétisme des vésicules ? 153
3.1 Les globules rouges 153
3.2 Le système circulatoire 157

IV Vers une prise en compte des effets collectifs ? 161

1 Rhéologie des liquides diphasiques 163
1.1 Position du problème et mise en équation 163
1.2 Fonctions rhéologiques mesurables 165
1.3 Résultats numériques 167

Conclusion 175

A Notations utilisées dans ce document 179
A.1 Symboles grecs 179
A.2 Symboles latins 180

B La limite "interface raide" 183
B.1 Géométrie différentielle 183
B.2 Le cas des gouttes 185
B.2.1 Motivations 186
B.2.2 Limite dans l'espace externe 187
B.2.3 Limite dans l'espace interne 188
B.3 Le cas des vésicules 192

C Algorithme de résolution 195
C.1 Opérateurs différentiels 195
C.2 Influence du maillage sur les résultats 196
C.2.1 Géométrie bidimensionnelle 196
C.2.2 Géométrie tridimensionnelle axisymétrique 200

C.3 Conditions aux limites : non glissement 202
C.4 Equation de Stokes et incompressibilité 202
C.5 Valeur des paramètres 205
C.5.1 Vésicules 205
C.5.2 Gouttes 205
C.5.3 Diphasiques 206

D Dérivation de la force de membrane en terme de champ de phase 207
D.1 La force de courbure 207
D.2 La force de Lagrange 209

E Calculs analytiques pour la force de portance 211
E.1 Elasticité du substrat 211
E.2 Calcul perturbatif pour la force de portance 214
E.2.1 Le cas du cylindre 217
E.2.2 Le cas des vésicules 218

Remerciements

Mes remerciements s'adressent en premier lieu à Madame BARTHÈS-BIESEL, Professeur à l'Ecole Polytechnique et à l'Université Technologique de Compiègne, ainsi qu'à Monsieur BOCQUET, Professeur à l'Université Claude Bernard de Lyon, qui ont accepté de rédiger un rapport détaillé sur mon travail. Il est très intéressant pour un jeune chercheur de bénéficier des remarques de deux scientifiques de renom issus de communautés aussi différentes (la Mécanique et la Physique).

J'exprime également toute ma gratitude aux membres du jury qui ont assisté à ma soutenance : Monsieur PROST, Directeur de l'Ecole Supérieure de Physique et Chimie Industrielles de Paris, Monsieur FOURCADE, Professeur à l'Université Joseph Fourier de Grenoble, et Monsieur Kassner, Professeur à l'Université Otto von Guericke de Magdeburg (Allemagne). Je remercie plus particulièrement Monsieur KASSNER pour son hospitalité lors de mes séjours à Magdeburg.

Naturellement, je remercie également Monsieur Thierry BIBEN qui a su me guider tout au long de ces trois années de recherche en m'impliquant activement dans son réseau de collaborations, tout en m'accordant une grande liberté quand à l'orientation de mes travaux.

Je n'oublie pas Monsieur Chaouqi MISBAH, qui anime avec talent l'activité scientifique de notre groupe depuis déjà plusieurs années, et qui sait communiquer avec enthousiasme sa passion pour la Physique aux jeunes Doctorants de l'équipe.

Je pense aussi à mes collègues marathoniens du Laboratoire de Mathématiques et Calcul de Grenoble, en espérant peut-être les recroiser à Paris, Berlin ou New-York dans les années à venir : Emmanuel MAÎTRE, Eric BLAYO, et la plus rapide de tous, Catherine LAÏOLO !

Un grand merci également à tous les membres du groupe qui ont contribué à la bonne ambiance de ces trois années de thèse et aux collègues thésards qui m'ont été d'un grand secours pour la préparation du pôt de thèse...

Je pense surtout à Maud et Thomas, qui m'ont ouvert les yeux sur les dures réalités de la Physique Expérimentale en microgravité lors d'un vol à bord d'un Airbus un peu spécial... Heureusement, j'ai pu aussi m'initier à cette occasion aux charmes dyonisiens de la petite commune de Saint-Emilion...

Je ne saurais terminer ce court paragraphe sans une pensée affectueuse aux membres de ma famille, et en particulier à mes parents, qui m'ont soutenu à tous les niveaux, et pas uniquement ces trois dernières années : sans eux, rien de tout cela n'aurait été possible. Ils m'ont donné la chance de pouvoir arriver là où je suis aujourd'hui, et là où je serai demain : je ne l'oublie pas. Toute mon affection aussi à ma petite sœur Amandine et son Benoît, pour leur fraîcheur, leur joie de vivre et leur insouciance (continuez comme ça !).

Mais le mot de la fin doit revenir à Véro : trois années difficiles ne s'effacent pas en quelques mots, mais j'espère que celles qui nous attendent seront longues et heureuses. Aujourd'hui, je ne sais plus très bien si ces trente derniers mois (et des poussières...) d'études méritaient réellement tous ces sacrifices, et j'espère qu'ils seront bien vite effacés ...

Introduction

Ce travail de recherche, de nature essentiellement numérique, porte sur la modélisation de problèmes aux frontières libres en mécanique des fluides à travers deux exemples : la déformation de gouttes viscoélastiques et la dynamique de vésicules sous cisaillement. Ces deux systèmes possèdent suffisamment de richesses pour faire l'objet d'une étude spécifique : le premier pose le problème de l'influence de polymères sur la dynamique de rupture de gouttes soumises à une élongation, le second est un système modèle pour les globules rouges. Bien que très éloignés au premier abord, ils sont tous les deux caractérisés par la présence d'une interface libre, susceptible d'évoluer au cours de la dynamique. Ce type d'étude constitue en fait une première étape vers la modélisation et la compréhension du rôle des interfaces dans le comportement mécanique des liquides diphasiques (tels que les mélanges de polymères ou le sang), qui sont très fréquemment rencontrés en mécanique des fluides, géophysique, biomécanique ou dans de nombreux systèmes industriels (par exemple dans l'industrie plasturgique, l'agroalimentaire, les moteurs à injection, mais aussi dans les circuits de refroidissement secondaires des réacteurs nucléaires à eau bouillante...).

D'un point de vue fondamental, il est clair que la présence d'interfaces libres dans un liquide complique singulièrement sa description mécanique globale : même dans le cas très idéalisé d'un mélange de deux liquides A et B simples, immiscibles, et aux propriétés physiques identiques (même densité, même viscosité, etc...), la réponse à une contrainte appliquée ne sera pas simplement la superposition des réponses des deux liquides pris isolément. Lors du mélange de deux liquides par exemple, la "quantité d'interface" produite par l'écoulement peut devenir très importante, et par conséquent de fortes non linéarités sont susceptibles de se développer. Par ailleurs, même si les deux liquides en présence sont purement visqueux, la tension de surface va permettre un stockage d'énergie élastique qui va provoquer l'apparition d'un comportement viscoélastique global. Les interfaces peuvent également être le lieu de phénomènes spécifiques : transition de phase liquide-vapeur au niveau des bulles dans un liquide en ébullition, échanges de matière et d'énergie au niveau de la membrane des cellules, etc...

Pourtant, d'un point de vue physique et mathématique, le problème est très bien posé. Connaissant le coût énergétique d'une déformation infinitésimale de l'interface, ainsi que sa configuration spatiale, il est possible d'écrire propre-

ment les conditions aux limites appropriées pour les deux liquides A et B, et ainsi assurer l'existence et l'unicité d'une solution aux équations bien connues de NAVIER-STOKES. Naturellement, la résolution effective de ces équations n'est pas nécessairement simple, même si l'interface était figée. Or il n'en est rien, puisque les contraintes appliquées vont modifier sa position. Cette caractéristique, couplée au coût énergétique lié à la déformation de l'interface, va précisément se traduire par l'apparition de non linéarités au niveau global.

Ainsi, pour parvenir à une description unifiée de la dynamique des liquides diphasiques, il est nécessaire de comprendre la dynamique d'objets isolés, bien contrôlables d'un point de vue expérimental. La modélisation numérique joue alors un rôle important, aussi bien dans le cadre d'études fondamentales comme c'est le cas dans ce travail, que dans la résolution de problèmes industriels appliqués. La première partie de cette thèse sera ainsi consacrée à une présentation des aspects numériques mis en œuvre dans ce travail. La résolution numérique de problèmes aux frontières libres dans le cas de grandes déformations, qui tienne compte naturellement des possibles réorganisations topologiques au sein du mélange, reste en effet un véritable défi. Dans cette thèse, nous utilisons préférentiellement une méthode basée sur une régularisation de l'interface et un suivi implicite de sa position. Le caractère singulier du problème est alors supprimé. Naturellement, cela n'est pas sans conséquence sur la dynamique elle même, surtout aux petites échelles de longueur, et nous nous sommes efforcés de porter systématiquement un regard critique sur nos résultats. Une telle méthode, héritée de la modélisation de la croissance cristalline, initiée il y a une quinzaine d'années (et pour laquelle elle commence seulement à donner des résultats réellement quantitatifs), est encore à un stade de développement dans la communauté de la mécanique des fluides. Le premier chapitre de cette partie sera consacré à une présentation générale de cette méthode. Ses avantages ainsi que ses inconvénients seront discutés spécifiquement tout au long du texte. Le second chapitre sera pour nous l'occasion de présenter succintement l'algorithme de résolution. En effet, un algorithme de résolution efficace a d'ores-et-déjà été mis en œuvre dans le cas des vésicules et des gouttes newtoniennes [18], et l'un des objectifs de ce travail est de valider systématiquement le modèle de champ de phase lui-même par l'étude de l'influence des paramètres intrinsèques au modèle sur les résultats, avant d'étendre l'étude à des situations plus complexes. Dans cet optique, nous avons choisi d'utiliser les méthodes de résolution numérique les plus robustes et les plus simples. Nous illustrerons cela par quelques exemples simples. Bien sûr, pour des applications plus systématique il est préferable d'utiliser des méthodes numériques moins onéreuses, et en particulier d'utiliser des grilles adaptées aux interfaces, qui focalisent la précision du calcul dans ces régions seulement, et non pas dans tout l'espace, comme c'est le cas dans cette thèse.

La deuxième partie de ce travail est ainsi consacrée à la déformation et à la rupture de gouttes viscoélastiques. Le premier chapitre de cette partie est consacré à une présentation de résultats bien connus sur la dynamique de solutions de polymères, aussi bien d'un point de vue expérimental que théorique. En particulier, le modèle d'OLDROYD B est détaillé, et son origine microscopique justifiée. Bien que ce modèle soit largement utilisé par la communauté des rhéologues, il nous a semblé important d'inclure un tel chapitre dans ce travail. Le deuxième chapitre est davantage centré sur nos résultats obtenus pour la morphologie de gouttes viscoélastiques sous élongation. Après une confrontation des prédictions de notre modèle numérique avec les résultats analytiques bien connus dans le régime newtonien, nous montrons le rôle de la viscoélasticité sur le développement d'une instabilité de courbure caractéristique au niveau de la pointe de la goutte. Enfin, le troisième et dernier chapitre de cette partie est consacré à l'étude du comportement dynamique des gouttes dans les régimes instationnaires. L'influence de la viscoélasticité sur la perte de stabilité en élongation ainsi que sur la rupture de gouttes initialement allongée puis laissées libre de relaxer, est étudiée numériquement.

La troisième partie est centrée sur la dynamique de vésicules sous cisaillement, que nous pensons être de bons modèles pour les globules rouges. Le premier chapitre est consacré à la description mécanique de la membrane de ces objets. Nous montrons clairement que ces propriétés sont très différentes et beaucoup plus complexes que celles des gouttes. Nous présentons également quelques résultats en situation dynamique. Plus précisément, une transition dynamique sous cisaillement, contrôlée par le taux de dégonflement et le rapport de viscosités entre l'intérieur et l'extérieur de la vésicule est mis en évidence et caractérisé. Le savoir-faire accumulé dans notre groupe depuis le travail de thèse d'Isabelle CANTAT en terme de modélisation des vésicules par la méthode des intégrales de frontières, nous a permis une confrontation directe et une validation de notre méthode numérique de champ de phase. Une comparaison avec un modèle analytique simple pour les globules rouges est également présentée. Le second chapitre est plus spécifiquement consacré à une étude de la force de portance au voisinage d'un substrat déformable. Nous montrons alors l'existence d'un maximum, et le calcul numérique est supporté par une approche analytique de lubrification, pour les vésicules non dégonflées. Une telle étude, même si elle possède un intérêt propre, est justifié par l'existence d'une couche de gel déformable sur la paroi des capillaires sanguins, le glycocalyx. Enfin, le troisième chapitre de cette partie nous permet de poser la question de la pertinence du modèle des vésicules pour les globules rouges. Une étude des nombres sans dimension caractéristiques nous permet de conclure par l'affirmative. Un lien entre notre modèle pour la paroi déformable et les paramètres mécaniques du glycocalyx est également établi.

Avant de conclure ce document, une courte partie consacrée à la prise en compte des effets collectifs dans les liquides diphasiques est présentée. Il s'agit davantage d'une illustration qualitative de la capacité du modèle à prendre en compte de tels phénomènes, et aucune prétention d'exhaustivité n'est ici revendiquée.

Première partie

Aspects numériques

Chapitre 1

Modélisation numérique

Dans ce chapitre, nous allons nous focaliser sur la méthode numérique utilisée de façon privilégiée dans ce travail pour la modélisation des interfaces. Deux grandes classes de méthodes existent pour décrire numériquement les problèmes aux frontières libres, suivant la technique utilisée pour localiser l'interface. La première, **Lagrangienne**, repose sur un suivi **explicite** de la position de l'interface, ce qui permet une prise en compte précise des conditions aux limites. La seconde, **Eulérienne**, est basée sur une méthode de capture de front : la position de l'interface est déterminée **implicitement** grâce à une variable scalaire supplémentaire, dont la dynamique est étendue à tout le volume de résolution. L'avantage de cette deuxième approche, dont la méthode de champ de phase est un bon exemple, réside dans sa simplicité d'implémentation (voir chapitre suivant) et dans la prise en compte naturelle des processus de réorganisations topologiques (fragmentation ou coalescence).

Dans un premier temps, nous rappelons les équations générales de l'hydrodynamique que nous sommes amenés à résoudre, ainsi que les conditions aux limites appropriées.

Ensuite, nous présentons rapidement les méthodes d'inspiration **Lagrangienne**, basées sur une discrétisation de l'interface et un suivi explicite des points de ce maillage. Ces méthodes sont parfois désignées par l'expression "front tracking" dans la littérature anglo-saxonne. Il s'agit de techniques valables aux bas nombres de Reynolds, quand l'inertie peut être négligée. Il est surtout question ici des intégrales de frontières (**BEM**), dont le domaine d'application peut être étendu aux rhéologies non newtoniennes (voir chapitre 1, partie II). Nous présentons également le cas newtonien, que nous utilisons par la suite pour valider la méthode du champ de phase dans le cas des vésicules sous cisaillement (voir partie III). Le développement de l'algorithme de résolution utilisé est directement hérité du travail de thèse d'Isabelle Cantat [26], et n'entre pas directement dans le cadre de cette thèse. Cependant, il nous a semblé important de rappeler ici le principe de la méthode pour pouvoir mieux mettre en valeur les avantages d'une approche de type champ de phase.

A ce titre, la méthode du champ de phase est ensuite plus longuement présentée. Dans cette approche, l'interface est **capturée** par la dynamique ("front capturing" en anglais). Cette méthode s'est déjà averrée capable de traiter certains problèmes aux frontières libres en mécanique des fluides [24, 61], et un algorithme de résolution simple et robuste (présenté dans le prochain chapitre) a d'ores-et-déjà pu être mis en œuvre dans le cas des vésicules et des gouttes newtoniennes [18]. Il reste à valider systématiquement les équations de ce modèle, ce qui constitue un des objectifs de ce travail.

1.1 Formulation générale du problème

De façon très générale, notre problème est le suivant : un écoulement est appliqué à l'infini sur un liquide diphasique, composé de deux phases que nous désignerons par les exposants 1 et 2 (voir figure 1.1). La généralisation à un nombre plus important de phases est immédiate.

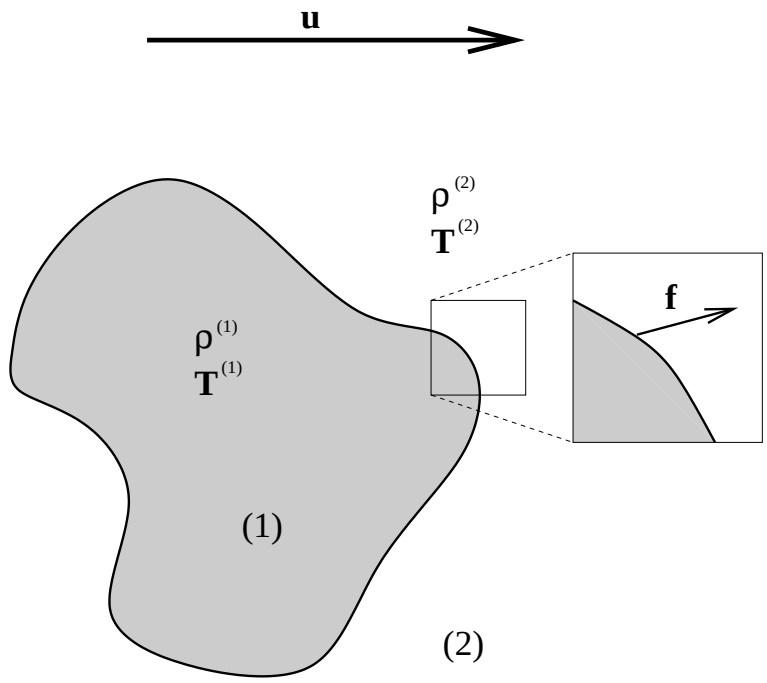


FIG. 1.1 – *Schéma général du système considéré.*

Dans chaque fluide, la conservation de la quantité de mouvement et de la masse doit être vérifiée. Dans le cas de fluides incompressibles, nous avons donc :

$$\text{Fluide (1)}: \begin{cases} \rho^{(1)}\left(\partial_t \mathbf{v}^{(1)} + \mathbf{v}^{(1)}.\nabla \mathbf{v}^{(1)}\right) = \nabla.\mathbf{T}^{(1)} - \nabla P^{(1)} \\ \nabla.\mathbf{v}^{(1)} = 0 \end{cases}$$
$$\text{Fluide (2)}: \begin{cases} \rho^{(2)}\left(\partial_t \mathbf{v}^{(2)} + \mathbf{v}^{(2)}.\nabla \mathbf{v}^{(2)}\right) = \nabla.\mathbf{T}^{(2)} - \nabla P^{(2)} \\ \nabla.\mathbf{v}^{(2)} = 0 \end{cases} \tag{1.1}$$

Le tenseur $\mathbf{T}^{(1,2)}$ est le tenseur des contraintes du liquide considéré. Dans le cas de liquides simples, il est donné par $2\eta^{(1,2)}\mathbf{D}$, avec $\eta^{(1,2)}$ la viscosité du liquide et $\mathbf{D}$ le tenseur de taux de déformation local. Pour les liquides complexes, l'équation constitutive reliant les taux de déformations aux contraintes n'est plus simplement linéaire, comme nous le verrons dans la partie consacrée aux gouttes viscoélastiques (partie II). Toutefois, à ce niveau, il n'est pas nécessaire de préciser davantage la nature physique du liquide considéré. Par souci de simplicité, nous supposerons que les deux fluides ont la même densité : nous pouvons donc négliger la poussée d'ARCHIMÈDE. Dans la suite de ce travail, la gravité n'interviendra d'ailleurs jamais, sauf dans l'étude de la force de portance sur les vésicules, dans le chapitre 2 de la partie III.

La vitesse est imposée sur les parois du domaine, ou à l'infini dans le cas de systèmes non confinés :

$$\mathbf{v}\left(|\mathbf{r}| \to \infty\right) = \mathbf{u}. \tag{1.2}$$

Dans les cas qui nous intéressent par la suite, il s'agit soit d'un écoulement de cisaillement, soit d'une élongation. Enfin, il convient de préciser les conditions aux limites au niveau de l'interface ∂S. Si la configuration énergétique de l'interface peut être décrite par une fonctionnelle $\mathcal{E}$, alors la force associée à une déformation infinitésimale $\delta\mathbf{r}$ de l'interface est simplement donnée par $\mathbf{f} = -\delta\mathcal{E}/\delta\mathbf{r}$. La somme des forces sur chaque élément de surface est nulle, ce qui se traduit par :

$$\mathbf{n}.\left(\mathbf{T}^{(1)}\left(\mathbf{r}\right) - P^{(1)}\left(\mathbf{r}\right)\mathbf{I}\right) = \mathbf{n}.\left(\mathbf{T}^{(2)}\left(\mathbf{r}\right) - P^{(2)}\left(\mathbf{r}\right)\mathbf{I}\right) + \mathbf{f} \tag{1.3}$$

avec $\mathbf{r} \in \partial S$, $\mathbf{n}$ la normale au point considéré et $\mathbf{I}$ le tenseur unité. Enfin, la continuité des vitesses au niveau de l'interface se traduit par :

$$\mathbf{v}^{(1)}\left(\mathbf{r}\right) = \mathbf{v}^{(2)}\left(\mathbf{r}\right) = \mathbf{v}_{\partial S}\left(\mathbf{r}\right) \tag{1.4}$$

avec $\mathbf{v}_{\partial S}$ la vitesse de l'interface.

La difficulté apparaît alors nettement, puisque d'une part toute la physique des interfaces est contenue dans un espace de mesure nulle au sens mathématique (une surface pour un problème à trois dimensions ou une ligne

dans une géométrie bidimensionnelle), et que d'autre part cette interface se déplace à une vitesse qui dépend implicitement de sa configuration, par le biais de la force qu'elle exerce sur le fluide environnant. Par ailleurs, la topologie de l'interface n'est pas nécessairement conservée au cours de l'évolution dynamique du système. Des phénomènes de reconnection ou de rupture peuvent apparaître. Numériquement, il s'agit d'une difficulté supplémentaire puisqu'immédiatement après la reconnection, des singularités de courbure peuvent apparaître, qui nécessitent une description locale très fine. Mais déjà du point de vue physique, les difficultés sont importantes puisque la reconnection ou la séparation d'interface fait intervenir des phénomènes à l'échelle moléculaire, pour lesquels la description en terme de milieu continu utilisée pour les liquides en présence n'est plus nécessairement valide. Enfin, ces phénomènes sont en général très rapides [53] au regard de l'écoulement environnant. Les échelles de temps et de longueur qui interviennent dans le problème sont donc dispersées sur plusieurs ordres de grandeur.

Il s'agit donc d'un problème très singulier, non linéaire et aux frontières libres, comme nous l'avons mentionné dans l'introduction. La modélisation numérique de tels phénomènes est difficile, et plusieurs stratégies ont été envisagées.

1.2 Approche Lagrangienne : suivi d'interface

Cette approche est basée sur une discrétisation explicite de l'interface, qui apparaît nettement comme une frontière entre deux sous domaines traîtés séparément. Dans le cas d'écoulements aux bas nombres de REYNOLDS, pour lesquels l'inertie peut être négligée, l'écoulement est décrit par une formulation intégrale. Pour les liquides newtoniens, nous verrons que l'intégrale est limitée à l'interface. Dans ce cas, cette méthode peut s'avérer très efficace. En effet, si la discrétisation du volume dans chaque direction nécessite N points, alors le domaine de calcul contiendra N^3 points. Si l'interface n'est pas trop déformée, alors N^2 points seulement seront nécessaires pour la décrire. Dans le cas contraire, l'efficacité peut être sensiblement diminuée.

1.2.1 Intégrales de frontières (BEM)

L'expression générale du champ de vitesses est donnée dans les références [75, 165]. Dans le cadre de l'approximation de STOKES, les effets inertiels sont négligeables et la dynamique est déterminée par :

$$\eta \Delta \mathbf{v} - \nabla P = -\nabla . \mathbf{T}_{NN}^{(1,2)} \tag{1.5}$$

avec $\mathbf{T}_{NN}^{(1,2)}$ les éventuelles contributions non newtoniennes (voir chapitre 1, partie II), traitées ici comme des termes sources dans l'équation de STOKES.

La représentation intégrale de la vitesse dans tout le domaine est alors donnée par [1] :

$$\eta^{(1,2)} c_{ik} v_i(\boldsymbol{r}) = -\int_V \partial_j T^{(1,2)}_{NN,ij}(\boldsymbol{r}') J_{ik}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')\, d\mathbf{r}' + \eta^{(1,2)} \int_{\partial S} K_{ijk}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}') v_i(\boldsymbol{r}') n_j(\boldsymbol{r}')\, dS + \int_{\partial S} J_{ik}(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}') f_i(\boldsymbol{r}')\, dS \tag{1.6}$$

Dans cette expression, les coefficients c_{ik} sont donnés par :

$$c_{ik} = \begin{cases} \delta_{ik} & \text{si} \quad \mathbf{x} \in V \\ \frac{1}{2}\delta_{ik} & \text{si} \quad \mathbf{x} \in \partial S \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \tag{1.7}$$

Les noyaux **J** et **K** sont quant à eux donnés par :

$$K_{ijk} = -\frac{3}{4\pi}\frac{r_i r_j r_k}{|\mathbf{r}|^5} \tag{1.8}$$

et

$$J_{ik} = \frac{1}{8\pi}\left(\frac{\delta_{ik}}{|\mathbf{r}|} + \frac{r_i r_k}{|\mathbf{r}|^3}\right). \tag{1.9}$$

Pour information, nous donnons également les expressions bidimensionnelles de ces quantités :

$$K^{2D}_{ijk} = -\frac{1}{\pi}\frac{r_i r_j r_k}{|\mathbf{r}|^4} \tag{1.10}$$

et

$$J^{2D}_{ik} = \frac{1}{4\pi}\left(-\delta_{ij}\log(|\mathbf{r}|) + \frac{r_i r_j}{|\mathbf{r}|^2}\right). \tag{1.11}$$

Si le régime considéré est newtonien, la contribution volumique de l'équation générique (1.6) disparaît, et les intégrales restent bidimensionnelles. En pratique, ces méthodes ont été appliquées dans le cas de gouttes viscoélastiques dans une matrice newtonienne [75]. Dans ce cas, la contribution volumique est limitée à l'intérieur de la goutte, ce qui rend les calculs plus accessibles numériquement. La difficulté est néanmoins importante, puisque la relation pour le champ de vitesses (1.6) n'est pas explicite.

1. Dans toute la suite de ce document, la notation ∂_x désigne une dérivation par rapport à la variable en indice. Ici, ∂_i représente une dérivation dans la direction i.

1.2.2 Application au cas newtonien

La richesse de cette approche s'est surtout révélée dans le cas purement newtonien [37, 120] et nous sera utile pour l'étude des problèmes de dynamique de vésicules (chapitre 2, partie III) [12, 13, 26]. Il est alors possible d'obtenir la relation suivante pour la vitesse de la membrane [12] :

$$\begin{aligned}\frac{\eta^{(1)}+\eta^{(2)}}{2}\mathbf{v}_{\partial S} &= \int_{\partial S}\mathbf{J}\left(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'\right)\mathbf{f}\left(\boldsymbol{r}'\right)d\mathbf{r}' \\ &+\left(\eta^{(1)}-\eta^{(2)}\right)\int_{\partial S}\mathbf{v}\left(\mathbf{r}'\right)\mathbf{K}\left(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'\right)\mathbf{n}\left(\mathbf{r}'\right)d\mathbf{r}'+\mathbf{u}\end{aligned} \tag{1.12}$$

Cette fois encore, la relation est seulement implicite. Néanmoins, l'intégrale qui apparaît dans (1.12) est purement bidimensionnelle[2]. Les temps de calcul sont alors relativement faibles, ce qui fait l'intérêt de cette méthode. Par ailleurs, l'incompressibilité des liquides est prise en compte de façon autocohérente dans l'équation (1.12).

1.2.3 Avantages et inconvénients

L'avantage majeur de cette approche réside dans la prise en compte précise des conditions aux limites. En effet, la seule limitation est liée au degrès de raffinement du maillage de l'interface. Par ailleurs, dans le cas newtonien en tout cas, les temps de calcul restent ici très raisonnables, y compris dans le cas de relations implicites en présence de contraste de viscosités.

Par contre, ces méthodes sont limitées aux faibles déformations des interfaces. Dans le cas contraire en effet, la densité de points sur l'interface diminue, et la précision du calcul en est sensiblement affectée. Des méthodes de remaillage existent qui permettent de conserver une densité de points constante [37], mais dans ce cas, les temps de calculs ne sont plus nécessairement avantageux.

Enfin, les réorganisations topologiques sont difficiles à implémenter, et nécessitent l'introduction de règles *ad hoc* pour les mécanisme de rupture et de coalescence.

1.3 Approche Eulérienne : capture d'interface

Dans cette approche, aucune information explicite sur la position de l'interface n'est nécessaire. La position de la surface libre est obtenue par la localisation d'un isocontour d'un champ annexe régulier (en général il s'agit de l'isocontour de valeur 0).

2. Et même unidimensionnelle si nous nous plaçons dans un domaine de calcul bidimensionnel.

Le point de départ consiste à exprimer les équations de conservation (1.1) dans tout le domaine, défini comme la réunion des deux sous-domaines limités par l'interfaces ∂S. Considérons alors un élément de volume Ω occupé par les deux fluides, et $\partial\Omega$ sa frontière. Nous supposons que l'interface ∂S entre les deux liquides est comprise à l'intérieur de Ω. Les sous-volumes occupés par les fluides sont alors $\Omega^{(1)}$ et $\Omega^{(2)}$, avec $\Omega^{(1)} \cup \Omega^{(2)} = \Omega$ et $\Omega^{(1)} \cap \Omega^{(2)} = \partial S$. Le taux de variation de la quantité de mouvement du liquide dans chaque sous-volume est alors donné par[3] :

$$\int_{\Omega^{(1,2)}} \rho^{(1,2)} \left(\partial_t \mathbf{v}^{(1,2)} + \mathbf{v}^{(1,2)}.\nabla \mathbf{v}^{(1,2)}\right) dV \tag{1.13}$$

La densité peut subir des discontinuités à la traversée de l'interface[4]. Cette variation est provoquée par les forces exercées par le liquide environnant :

$$\int_{\partial\Omega^{(1,2)}} \left(\mathbf{T}^{(1,2)} - P^{(1,2)}\mathbf{I}\right).\mathbf{n} dS + \int_{\partial S} \left(\mathbf{T}^{(1,2)} - P^{(1,2)}\mathbf{I}\right).\mathbf{n}^{(1,2)} dS \tag{1.14}$$

avec $\mathbf{n}^{(1)} = -\mathbf{n}^{(2)}$ la normale à l'interface entre les deux sous-domaines. Nous pouvons alors écrire :

$$\begin{aligned}
\int_\Omega \rho \left(\partial_t \mathbf{v} + \mathbf{v}.\nabla\mathbf{v}\right) &= \int_{\Omega^{(1)}} \rho^{(1)} \left(\partial_t \mathbf{v}^{(1)} + \mathbf{v}^{(1)}.\nabla\mathbf{v}^{(1)}\right) + \\
&\qquad \int_{\Omega^{(2)}} \rho^{(2)} \left(\partial_t \mathbf{v}^{(2)} + \mathbf{v}^{(2)}.\nabla\mathbf{v}^{(2)}\right) \\
&= \int_{\partial\Omega^{(1)}} \left(\mathbf{T}^{(1)} - P^{(1)}\mathbf{I}\right).\mathbf{n}^{(1)} dS + \int_{\partial\Omega^{(2)}} \left(\mathbf{T}^{(2)} - P^{(2)}\mathbf{I}\right).\mathbf{n}^{(1)} dS \\
&\quad + \int_{\partial S} \left(\mathbf{T}^{(1)} - \mathbf{T}^{(2)}\right).\mathbf{n}^{(1)} dS - \int_{\partial S} \left(P^{(1)} - P^{(2)}\right)\mathbf{I}.\mathbf{n}^{(1)} dS \\
&= \int_{\partial\Omega} \left(\mathbf{T} - P\mathbf{I}\right).\mathbf{n}^{(1)} dS + \int_{\partial S} \left(\mathbf{T}^{(1)} - \mathbf{T}^{(2)}\right).\mathbf{n}^{(1)} dS \\
&\quad - \int_{\partial S} \left(P^{(1)} - P^{(2)}\right)\mathbf{I}.\mathbf{n}^{(1)} dS.
\end{aligned} \tag{1.15}$$

Les champs de vitesse $\mathbf{v}$ et de contrainte $\mathbf{T}$ sont définis dans tout le volume, et leurs restrictions à $\Omega^{(1)}$ (resp. $\Omega^{(2)}$) coïncident avec $\mathbf{v}^{(1)}$ et $\mathbf{T}^{(1)}$ (resp. $\mathbf{v}^{(2)}$ et $\mathbf{T}^{(2)}$). L'intégrande des deux dernières intégrales n'est rien d'autre que le saut de contraintes à la traversée de l'interface ∂S. Il est donné par la force

3. Cette dérivation s'inspire du cours de DEA de Georges-Henry COTTET ("Modèles et calculs d'interfaces" [36]) et de la référence [30].

4. Il est en effet possible de définir une densité dans tout l'espace de la façon suivante : $\rho = \rho^{(1)} H_{\partial S} + \rho^{(2)}(1 - H_{\partial S})$ avec $H_{\partial S}$ la distribution de HEAVISIDE centrée sur la position de l'interface.

$\mathbf{f}$ exercée par l'interface sur les liquides environnants (voir relation (1.3)). La dernière étape consiste alors à utiliser le théorème de STOKES pour étendre les intégrales de surface à l'ensemble du volume. La seule difficulté concerne la contribution de l'intégrale sur ∂S qui est singulière. Il est toutefois possible d'obtenir la relation suivante [36, 142] :

$$\rho\left(\partial_t \mathbf{v} + \mathbf{v}.\nabla\mathbf{v}\right) = \nabla.\mathbf{T} - \nabla P + \mathbf{f}\delta_{\partial S}\left(\mathbf{r}\right) \tag{1.16}$$

avec $\delta_{\partial S}\left(\mathbf{r}\right)$ la distribution de DIRAC portée par l'interface. La nature singulière du problème devient alors explicite, par le biais des distributions de DIRAC et de HEAVISIDE. Le principe fondamental des méthodes de champ de phase (et de "level set") consiste alors à régulariser l'interface.

1.3.1 La méthode du champ de phase

Le développement de cette méthode est relativement récent, et trouve son origine dans la thermodynamique hors équilibre et les transitions de phase. Les premiers modèles ont été développés pour l'étude de la solidification d'une substance pure. Les équations de base sont alors similaires à celles des modèles continus développés dans les années 70 pour étudier les transitions de phases du second ordre. Nous pouvons ainsi citer les travaux sur la croissance cristalline de COLLINS et LEVINE en 1985 [35], puis plus récemment par KARMA et PLAPP [82] et PIERRE-LOUIS [117]. Elle a été ensuite été appliquée au problème de la croissance dendritique par KOBAYASHI [86] puis par KARMA et RAPPEL [81]. Plus récemment encore, cette approche a été appliquée à l'étude de l'instabilité de GRINFELD qui apparaît à la surface d'un solide en compression uniaxiale [84]. En hydrodynamique, cette approche est encore à un stade exploratoire, mais a déjà été appliquée à différents problèmes, l'instabilité de HELE-SHAW [61], la convection par effet MARANGONI [24], la rupture de gouttes newtoniennes [19] ou la dynamique de vésicules [12]. Dans la suite de ce travail, nous présentons d'ailleurs une contribution à certains de ces résultats.

1.3.2 Principe de base

L'idée fondamentale s'inspire des modèles thermodynamiques simples pour la coexistence de deux phases (liquide-liquide ou liquide-gaz). L'équilibre des deux phases est décrit par un paramètre d'ordre noté θ. Ce paramètre vaut par exemple -1 dans le liquide 1, à grande distance de l'interface, et +1 dans le liquide 2[5]. La forme précise de l'interface est alors obtenue par la minimisation fonctionnelle d'une "énergie libre" de type GINZBURG-LANDAU [140] :

5. Ici, par "grande distance", nous entendons "très supérieure aux longueurs de corrélation dans le liquide", qui sont en général de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres pour les liquides simples.

$$\mathcal{F}[\theta] = \int_V \left[W(\theta) + \epsilon^2 \frac{|\nabla\theta|^2}{2} \right] d\mathbf{r} \tag{1.17}$$

Avec un potentiel en double puits :

$$W(\theta) = \frac{1}{4}\left(1-\theta^2\right)^2 \tag{1.18}$$

et les conditions aux limites appropriées ($\lim_{r\to\pm\infty} \theta(r) = \pm 1$) il est facile de montrer que l'on obtient un profil en tangente hyperbolique à une dimension :

$$\theta(r) = \tanh\left(\frac{r}{\epsilon\sqrt{2}}\right). \tag{1.19}$$

La quantité ϵ dans la fonctionnelle (1.17) peut donc être assimilée à la largeur de l'interface. Dans le modèle de GINZBURG-LANDAU, le paramètre d'ordre a une signification physique (densité par exemple), et la fonctionnelle $\mathcal{F}[\theta]$ est bien homogène à une énergie (l'échelle caractéristique d'énergie à ce niveau est donnée par $k_B T$). Dans ce cas, un excès d'énergie peut être calculé du fait de la présence de l'interface : il s'agit bien entendu de la **tension de surface**. Il est intéressant de rappeler que cette quantité est directement proportionnelle au paramètre ϵ (avec nos notations, nous aurions $\bar{\Sigma} = \epsilon 2\sqrt{2}/3$). Nous avons donc une "tension de surface" effective directement proportionnelle à la largeur de l'interface. En d'autres termes, la description de l'interface par un tel champ implique l'existence d'une force normale à l'interface, proportionnelle à sa courbure locale et à son épaisseur, qui va influencer la dynamique de θ, et donc de l'interface. Nous reviendrons par la suite sur ce point délicat.

A partir de ces résultats, il est possible de construire une régularisation de l'interface grâce au champ θ. Ce dernier est naturellement appelé "champ de phase", et sera soumis à une équation de transport du type :

$$\partial_t\theta + \mathbf{v}.\nabla\theta = -\Gamma^{-1}\frac{\delta\mathcal{F}}{\delta\theta} \tag{1.20}$$

avec Γ un paramètre homogène à un temps, qui contrôle la vitesse de relaxation du champ de phase vers le profil qui minimise la fonctionnelle $\mathcal{F}$. Tous calculs faits, nous obtenons finalement :

$$\partial_t\theta + \mathbf{v}.\nabla\theta = \Gamma^{-1}\left(\theta\left(1-\theta^2\right) + \epsilon^2\Delta\theta\right) \tag{1.21}$$

Le membre de droite traduit le transport du champ, et donc de l'interface, par l'écoulement, alors que le membre de gauche agit comme une force de rappel vers un profil en tangente hyperbolique. Ce second membre est essentiel et garantit la stabilité numérique de l'équation. La vitesse de relaxation du champ de phase vers le profil minimal est gouvernée par le paramètre Γ, homogène à un temps. En pratique, les valeurs de ce paramètre sont totalement découplées

des échelles de variations typiques de l'écoulement : Γ est ajusté de façon à ce que le profil du champ de phase reste bien défini tout au long de la dynamique.

Le problème du suivi explicite de l'interface est ainsi remplacé par celui, plus simple, de la résolution d'une équation d'advection-diffusion, avec un "terme source" en $\Gamma^{-1}\theta\left(1-\theta^2\right)$ et un coefficient de diffusion en $\epsilon^2\Gamma^{-1}$. Nous avons représenté sur la figure 1.2 la forme du champ de phase. L'interface est localisée au niveau de la zone de variation rapide du champ.

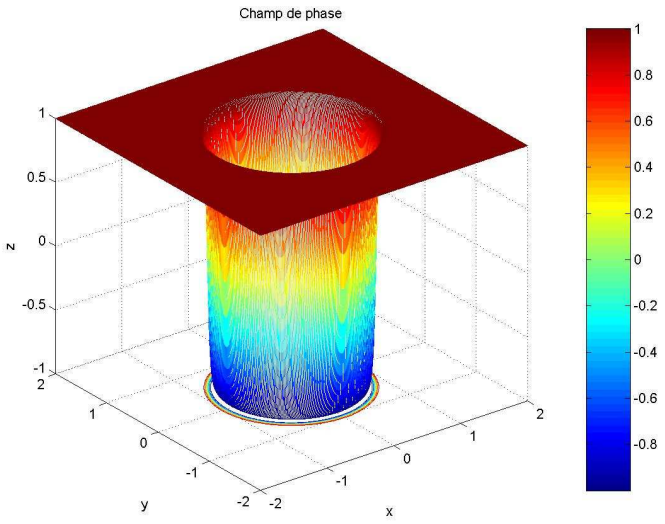


FIG. 1.2 – *Champ de phase θ (cas bidimensionnel)*

La définition de la viscosité ou de la densité peut alors être étendue à tout l'espace :

$$\begin{cases} \eta = \dfrac{1-\theta}{2}\eta^{(1)} + \dfrac{1+\theta}{2}\eta^{(2)} \\ \\ \rho = \dfrac{1-\theta}{2}\rho^{(1)} + \dfrac{1+\theta}{2}\rho^{(2)} \end{cases} \tag{1.22}$$

La distribution de DIRAC est quant à elle remplacée par $|\nabla\theta|/2$, qui possède les bonnes propriétés de normalisation puisque :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|\nabla\theta|}{2} dr = 1. \tag{1.23}$$

Enfin, toutes les quantités géométriques liées à l'interface peuvent être définies à partir du champ de phase, dans tout l'espace :

Vecteur normal	Courbure
$\mathbf{n} = \nabla\theta/\left\|\nabla\theta\right\|$	$c = -\nabla.\mathbf{n}$

Le liquide peut alors être traîté dans son ensemble, la contribution de l'interface étant localisée au niveau de l'interface par la distribution de DIRAC régularisée.

1.3.3 Avantages et inconvénients

Les inconvénients principaux sont liés à la largeur non nulle de l'interface, liée à la régularisation par la fonctionnelle de GINZBURG-LANDAU. Cette épaisseur finie va agir sur la dynamique du champ de phase, et donc indirectement sur l'écoulement (l'équation de NAVIER-STOKES contient en effet plusieurs termes qui dépendent de θ : les contrastes de viscosités et de densités, ainsi que la distribution de DIRAC régularisée $\delta_{\partial S}$). En fait, la fonctionnelle de GINZBURG-LANDAU contient implicitement la notion de tension de surface : en l'absence d'écoulement imposé, la forme du champ de phase va toujours tendre vers la sphère.

Dans le cas d'une interface "simple" entre deux liquides immiscibles, que l'on peut décrire à l'aide d'un seul paramètre (la tension de surface), nous pourrions utiliser cet effet avec profit. La force $\mathbf{f}$ associée à l'interface serait alors donnée par $\mathbf{f} = c\bar{\Sigma}\nabla\theta$ avec $\bar{\Sigma} = \epsilon 2\sqrt{2}/3$. Le paramètre d'ordre θ est ici dimensionné correctement pour que $\mathbf{f}$ soit bien homogène à une force (en pratique, cela revient à utiliser $k_B T$ comme échelle d'énergie au niveau microscopique).

Mais nous sommes alors confrontés à un problème essentiellement technique. En effet, le paramètre ϵ, qui doit être interprété comme la largeur de l'interface, peut être estimé à quelques nm pour les interfaces usuelles. Pour modéliser des gouttes de 10 μm, il faudrait alors des grilles de 10^6 points à deux dimensions, et 10^9 à trois dimensions! Naturellement, ceci est totalement prohibitif du point de vue numérique. En d'autres termes, la régularisation de l'interface que nous utilisons "mélange" deux échelles de longueurs (ou d'énergie) très différentes : pour l'hydrodynamique, nous sommes autour du μm, alors que pour l'interface, il s'agit plutôt du nm. Les limitations techniques (temps de calcul, mémoire, etc...) nous obligent en quelque sorte à surestimer la tension de surface dans le système. De plus, certaines interfaces demandent une description plus sophistiquée, notamment celles des vésicules sur lesquelles nous reviendrons dans la partie III[6].

Il est donc préférable d'utiliser une force $\mathbf{f}$ correctement dimensionnée, pertinente au niveau hydrodynamique (en choisissant par exemple des valeurs réalistes pour Σ, indépendantes de la largeur du champ de phase). Par contre, il est alors nécessaire de s'affranchir de la "tension de surface" implicitement contenue dans l'équation du champ de phase. Il est alors intéressant d'estimer la contribution de la largeur non nulle de l'interface, associée à notre procédé de régularisation, en effectuant un calcul perturbatif en puissances de ϵ.

6. En particulier, la forme d'équilibre des vésicules **n'est pas** sphérique.

Un tel calcul devrait en principe nous permettre d'éliminer ordre par ordre les effets liés à la largeur du champ de phase, au moins dans l'équation (1.21) [7]. Cette idée a été initialement proposée par FOLCH et collaborateurs dans la référence [61]. Dans ce travail, les auteurs étudient numériquement l'instabilité de HELE-SHAW dans un régime de lubrification (la dynamique du fluide est alors simplement gouvernée par la loi de DARCY). Le résultat principal consiste à ajouter un terme correctif en $\Gamma^{-1}\epsilon^2 c\,|\nabla\theta|$ dans l'équation d'advection de θ qui devient alors :

$$\partial_t\theta + \mathbf{v}.\nabla\theta = \Gamma^{-1}\left(\theta\left(1-\theta^2\right) + \epsilon^2\left(\Delta\theta + c\,|\nabla\theta|\right)\right) \tag{1.24}$$

L'influence de ϵ est alors supprimée jusqu'à l'ordre 1. Ainsi, la relaxation vers la forme sphérique sera ralentie, mais non totalement supprimée. Néanmoins, aux échelles de temps qui nous intéressent dans ce travail, cette correction est amplement suffisante.

Par contre, des effets non négligeables (et non triviaux) sont toujours présents dans les autres équations dynamiques, notamment l'équation de STOKES. Nous aurons l'occasion d'y revenir lors de l'analyse critique de nos résulats. Une version simple du calcul est présentée dans l'annexe B.

Par ailleurs, le champ de phase n'est pas une quantité conservée par la dynamique. En effet, l'intégrale

$$\int_V \theta dV \tag{1.25}$$

n'est pas constante au cours du temps, comme cela apparaît clairement à partir de l'équation (1.24). Une première source d'imprécision est liée à l'erreur systématique introduite dans le calcul du gradient (dans le terme d'advection). Nous avons pu réduire l'importance des dérives liées à ce terme en utilisant des opérateurs différentiels isotropes à l'ordre 2 , ou calculés dans l'espace de FOURIER (voir chapitre suivant et annexe C). Mais même en l'absence d'écoulement, une dérive (et donc une variation du volume de la particule) apparaît. En effet, le profil en tangente hyperbolique minimise la fonctionnelle (1.17), si les conditions aux limites imposent une variation entre -1 et +1. Au voisinage de l'interface, un profil en tangente hyperbolique correspond donc bien à un minimum, mais à un minimum **local**. D'un point de vue **global** par contre, le minimum de la fonctionnelle correspond en fait à $\theta = \pm 1$. En d'autres termes, les interfaces ne sont pas isolées, (voir figure 1.2), et le système finira toujours par relaxer vers le minimum global. Naturellement, plus la largeur de l'interface est grande, plus cet effet sera rapide. En pratique, ceci se traduira par une disparition d'un des deux liquides. Le terme correctif de FOLCH va naturellement ralentir la dynamique, mais ne l'empêchera pas tout-à-fait (voir

7. En pratique, les calculs deviennent vite inextricables, et nous nous contentons des corrections au premier ordre.

figure 1.3). Aux échelles de temps considérées dans la suite de ce travail, nous avons vérifié que les pertes de volume (ou de surface à deux dimensions) reste limitées à 2-3 % dans les régimes les plus contraignants.

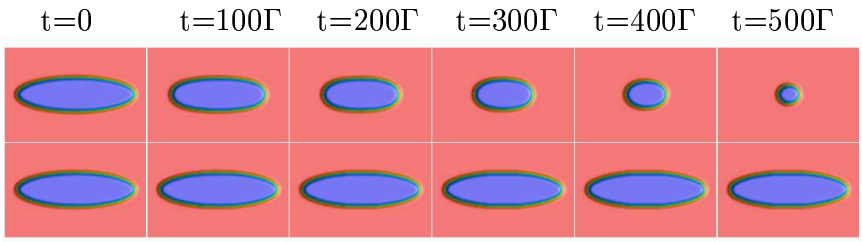


FIG. 1.3 – *Evolution temporelle du champ de phase, avec une morphologie initialement elliptique. Seule l'équation du champ de phase est résolue. La partie supérieure (1) montre l'évolution du champ de phase avec une dynamique de* GINZBURG-LANDAU, *sans terme correctif. Les effets liés à la valeur finie de* ϵ *sont doubles : tout d'abord, la forme elliptique n'est pas conservée, du fait de la tension de surface effective évoquée dans le texte. Ensuite, la surface de la zone bleue n'est pas conservée et tend à disparaître. Dans la partie inférieure (2), le terme correctif de* FOLCH *a été introduit. Cette fois, la forme et la surface sont bien conservées, du moins sur l'échelle de temps considérée ici.*

En pratique, nous ajustons le paramètre Γ *pour que les pertes en volume (ou en surface à deux dimensions) soient suffisamment faibles au cours de la dynamique. Nous parvenons à limiter les pertes à 3 % dans les cas les plus pénalisants.* La solution la plus efficace consiste néanmoins à remplacer la dynamique de GINZBURG-LANDAU par celle de CAHN-HILLIARD qui est conservative par construction. L'évolution de θ est alors déterminée par une équation de flux :

$$\partial_t \theta + \mathbf{v}.\nabla\theta = -\nabla.\mathbf{J} \tag{1.26}$$

avec $\mathbf{J}$ un flux diffusif, donné par :

$$\mathbf{J} = \Gamma^{-1}\nabla\left(\theta\left(1-\theta^2\right) + \epsilon^2\left(\Delta\theta + c\left|\nabla\theta\right|\right)\right). \tag{1.27}$$

Le terme de FOLCH est toujours présent, ce qui a pour effet ici aussi de ralentir la relaxation vers les formes sphériques. Dans ce cas, des dérivées d'ordre 4 apparaissent, qui rendent plus difficile la mise en œuvre numérique. Toutefois, des études sur la déformation et la rupture de gouttes purement visqueuses [19] ou la convection MARANGONI [24] (sans le terme correctif de FOLCH) ont pu être effectuées avec cette approche. Il faut noter cependant que des dérives (très lentes) sont toujours présentes, du fait des imprécisions commises sur l'évaluation du terme d'advection. Nous utiliserons cette équation

dans la dernière partie de ce document, consacrée à une description qualitative des effets rhéologiques dans les liquides diphasiques.

Les avantages de la méthode du champ de phase sont par contre multiples. Tout d'abord, les phénomènes de réorganisation topologiques vont pouvoir être pris en compte naturellement. Ceci sera important dans la partie consacrée à la rupture des gouttes, ainsi que dans l'étude des effets collectifs qui font intervenir de nombreuses coalescences et fragmentations. Par ailleurs, cette méthode permet la prise en compte de phénomènes rhéologiques non triviaux, grâce à l'introduction de lois constitutives adéquates pour le tenseur des contraintes. Enfin, si nous nous sommes limités ici au régime de STOKES, la prise en compte des effets inertiels est possible [24].

Une confrontation directe des méthodes d'éléments finis et d'intégrales de frontière est réalisée dans la référence [75], dans le cas de gouttes viscoélastiques en élongation dans un liquide lui aussi viscoélastique. Une description plus complète des aspects de modélisation par la méthode VOF ("Volume Of Fluid") peut être trouvée dans la revue de SCARDOVELLI et ZALESKI [142]. Enfin, pour la méthode du "level set", proche dans l'esprit de la méthode du champ de phase, une revue dédiée pourra être trouvée dans [148], par SETHIAN et SMEREKA, ou par PESKIN dans [113].

Chapitre 2

Algorithme de résolution

Ce chapitre vise à donner les grandes lignes de l'algorithme de résolution utilisé pour la résolution des systèmes d'équations que nous avons été amenés à traiter dans cette thèse, avec la méthode du champ de phase. Les aspects plus techniques sont rejetés dans l'annexe C, où plusieurs tests de validité sont présentés (influence du maillage et du calcul des opérateurs différentiels sur la dynamique de gouttes newtoniennes en élongation). Nous présentons également un certain nombre de tests directs dans quelques cas simples, notamment en ce qui concerne le calcul de la courbure, crucial pour les études ultérieures (aussi bien pour les gouttes que pour les vésicules).

Ce chapitre est organisé de la façon suivante : dans un premier temps, nous présentons la discrétisation spatiale utilisée (maillage et opérateurs différentiels). Le problème du calcul de la courbure est ici discuté. Nous évoquons alors plus rapidement la discrétisation temporelle, puis enfin l'algorithme de résolution à proprement parler, notamment pour l'équation d'advection-diffusion du champ de phase et pour l'équation hydrodynamique.

2.1 Discrétisation spatiale

Le premier aspect important concerne la discrétisation spatiale du problème, et nous précisons tout d'abord le maillage utilisé, puis la discrétisation des opérateurs différentiels.

2.1.1 Maillage

Pour l'ensemble des calculs de ce travail, nous utilisons un maillage structuré à mailles carrées. La nécessité de capturer précisément les petites échelles associées aux variations rapides du champ de phase dans la zone interfaciale nous conduit à utiliser un maillage extrémement dense et serré, y compris dans les zones où la variation des paramètres dynamiques, notamment le champ de vitesses, est plus lente. Dans ces conditions, les éventuels écarts que l'on

peut observer entre l'approche de type champ de phase et les résolutions plus précises comme la méthode intégrale ne dépendent que des paramètres intrinsèques au modèle, et ne dependent que très peu du maillage : c'est pourquoi nous préférons nous focaliser davantage sur ces paramètres plutôt que sur l'influence du maillage dans la suite de ce travail.

Concrétement, nous utilisons des grilles dont les dimensions sont 9 à 20 fois plus grandes que la taille typique des objets que nous étudions (gouttes ou vésicules), et la largeur des mailles est telle que plusieurs pas de grille sont contenus dans la zone de variation rapide du champ de phase. typiquement, nous avons $\epsilon = h$ pour les gouttes, et $\epsilon = 1{,}1h$ pour les vésicules, la largeur effective du champ de phase pouvant être estimée à 3ϵ. Notons d'ailleurs que certains auteurs utilisent des valeurs plus faibles, dans des situations bien particulières ($\epsilon = h/3$, dans la référence [86]). Nous sommes donc amenés à travailler avec des grilles de 300^2 jusqu'à 1600*250 nœuds.

2.1.2 Discrétisation des opérateurs différentiels

Deux aspects doivent être pris en compte à ce niveau. Le premier concerne la précision du calcul, le second l'isotropie.

Dans l'espace réel, nous utilisons bien entendu un schéma aux différences finies pour évaluer les opérateurs différentiels. En pratique, nous utilisons un schéma d'ordre 2 en h (avec h le pas du réseau carré sous jacent). Dans les phases préliminaires du développement de l'algorithme, nous avons utilisé des schémas d'ordre 4, sans que cela ait une influence mesurable sur les résultats. Par contre, il est clair que cette précision accrue a un prix puisque le nombre de points de calculs pour évaluer un opérateur donné en un point est beaucoup plus important dans le cadre d'un schéma d'ordre 4 que d'ordre 2. Mais de façon générale, nous avons préféré utiliser l'espace de FOURIER pour évaluer nos opérateurs différentiels, notamment pour évaluer le terme d'advection de l'équation du champ de phase. Nous revenons sur cet aspect dans le paragraphe 2.3.1. D'un point de vue pratique, nous avons bénéficié pour cela des librairies de transformées de FOURIER rapides [59].

Pour ce qui concerne l'anisotropie, nous utilisons des schémas isotropes d'ordre 2 en h (schéma à 6 points pour les gradients, voir annexe C). Dans les phases initiales, nous avons essayé un maillage hexagonal, plus symétrique, mais plus contraignant pour la résolution de l'équation hydrodynamique (en particulier pour la contrainte d'incompressibilité). L'isotropie est cruciale pour le calcul de la courbure, qui intervient dans le calcul de la force associée aux déformations de l'interface, que ce soit pour les gouttes ou les vésicules. Une anisotropie trop importante dans le calcul de cette quantité se traduira nécessairement par un "effet de maillage" : la sphéricité des gouttes à l'équilibre ne sera ainsi pas respectée.

Pour illustrer cet aspect, nous allons nous focaliser sur le calcul de la cour-

bure. Nous l'avons vu dans le chapitre précédent, elle est donnée par le gradient du vecteur normal :

$$c = -\nabla . \left(\frac{\nabla \theta}{|\nabla \theta|} \right) . \tag{2.1}$$

Le calcul dans l'espace de FOURIER est plus précis, mais introduit des instabilités caractéristiques aux faibles longueurs d'ondes, qui sont rapidement amplifiées et qui peuvent destabiliser complétement le système. Nous utilisons donc préférentiellement les shémas d'ordre 2, dans l'espace réel. Nous nous proposons d'engendrer un champ de phase bidimensionnel, de forme cylindrique. L'isocontour de valeur nulle est un cercle de rayon unité. Compte-tenu de ce qui précéde, la courbure, définie dans tout l'espace, doit varier en r^{-1}, avec r la distance au centre. En pratique, nous utilisons un masque qui permet de réduire le domaine de variations de c à un voisinage de l'interface. Nous voyons sur la figure 2.1 qu'une discrétisation anisotrope de la divergence conduit à une forte anisotropie de la courbure (figure de gauche). L'utilisation d'une divergence isotrope à l'ordre 2 (figure de droite) permet de supprimer cet effet.

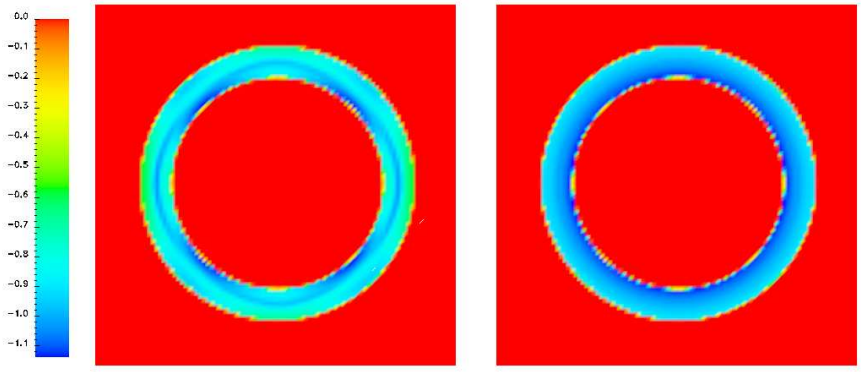


FIG. 2.1 – *Influence de l'isotropie de la discrétisation sur le calcul de la courbure : à gauche, version anisotrope de la divergence (schéma usuel à 4 points), à droite, version isotrope (schéma à 8 points, voir annexe C). Le rayon de l'objet est normalisé à 1, et nous utilisons un masque pour ne représenter la courbure qu'au voisinage de l'interface.*

Plus précisément, nous avons représenté sur les figures 2.2 et 2.3 la valeur de la courbure dans deux directions : suivant un des axes du maillage, et suivant un angle de 45 degrès, avec une discrétisation anisotrope. De façon générale, nous observons un bon accord avec l'expression analytique, mais des différences assez marquées apparaissent entre les deux directions que nous présentons.

Sur les figures 2.4 et 2.5, nous avons les mêmes quantités, cette fois avec une discrétisation isotrope. Cette fois, l'accord est indépendant de la direction, comme cela était suggéré sur la figure 2.1.

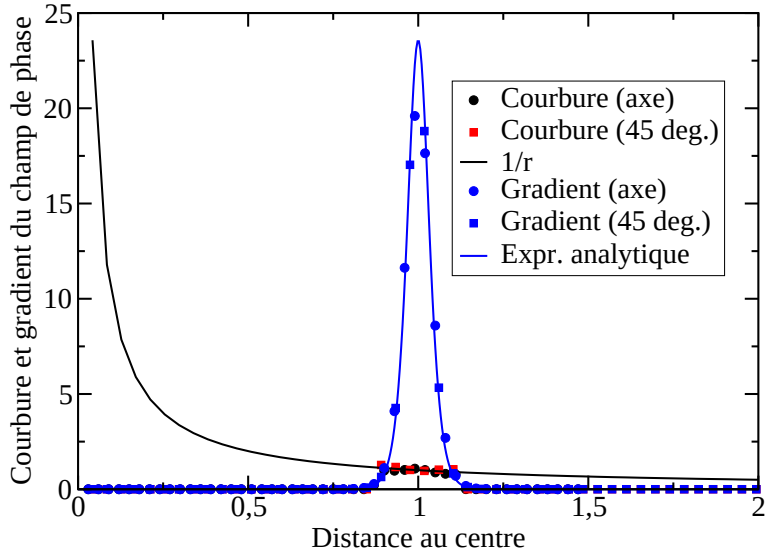


FIG. 2.2 – *Courbure et gradient du champ de phase dans une direction principale du maillage, et à 45 degrès. Les opérateurs différentiels sont ici anisotropes, et évalués dans l'espace direct.*

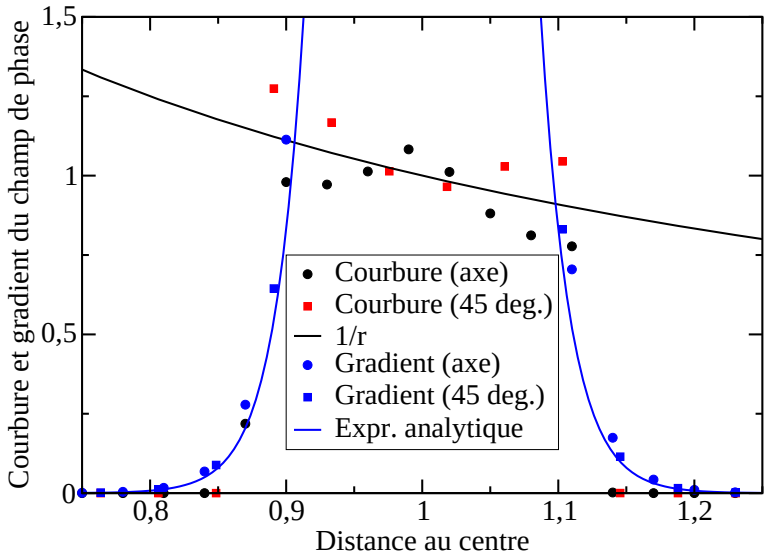


FIG. 2.3 – *Zoom sur la figure précédente.*

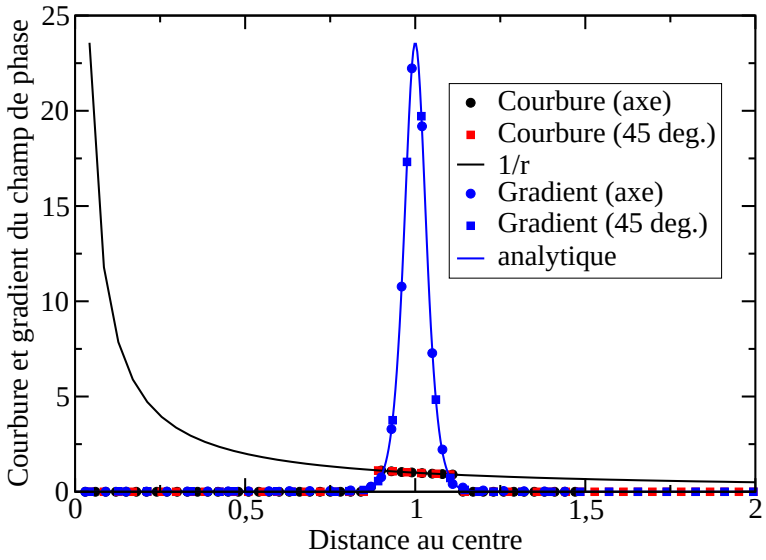


FIG. 2.4 – *Courbure et gradient du champ de phase dans une direction principale du maillage, et à 45 degrès. Nous utilisons ici une version isotrope à l'ordre 2 pour le calcul de la divergence (courbure). Le gradient est estimé dans l'espace de* FOURIER.

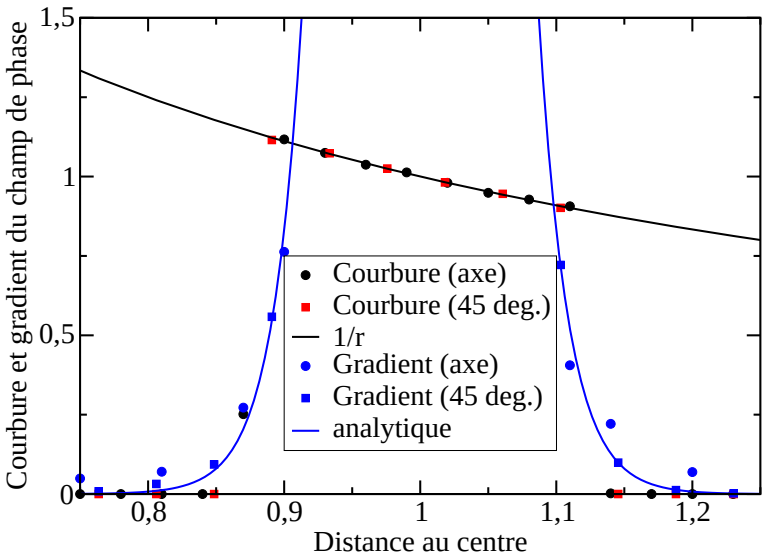


FIG. 2.5 – *Zoom sur la figure précédente.*

Nous représentons également sur ces figures la norme du gradient du champ de phase, dont la forme analytique est donnée par :

$$|\nabla\theta| = \frac{1}{\epsilon\sqrt{2}}\left(1 - \tanh\left(\frac{r}{\epsilon\sqrt{2}}\right)^2\right). \tag{2.2}$$

Sur les figures 2.2 et 2.3, ce gradient est calculé dans l'espace réel. Nous voyons que l'accord avec la forme analytique est satisfaisant, mais que le maximum est légérement sous estimé. Par contre, l'anisotropie n'est pas mesurable pour cette quantité. Sur les figures 2.4 et 2.5, le gradient est estimé dans l'espace de FOURIER, et cette fois le maximum est bien mieux capturé. Nous verrons dans le paragraphe 2.3.1 comment utiliser cette propriété pour améliorer la précision du calcul, notamment en ce qui concerne l'estimation du terme d'advection de l'équation du champ de phase (ce qui a un impact - faible - sur la conservation globale du volume de la particule considérée).

Notons également que le masque évoqué précédemment prend une valeur nulle quand le gradient du champ de phase est lui-même nul. Or, nous verrons par la suite que c'est la quantité $c\,|\nabla\theta|$ qui intervient en fait dans les différentes expressions de la force associée à l'interface (voir parties II et III) : le masque n'a donc *a priori* d'influence sur la dynamique. Nous avons également vérifié que la propriété intégrale :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{|\nabla\theta|}{2} dr = 1 \tag{2.3}$$

est bien vérifiée, indépendamment du choix effectué pour le calcul des opérateurs différentiels.

2.2 Discrétisation temporelle

Le second point important de l'algorithme concerne la discrétisation temporelle. Nous avons utilisé successivement des algorithmes d'EULER, de RUNGE-KUTTA d'ordre 4 et enfin un prédicteur-correcteur d'ADAMS-BASHFORD à pas variable [46]. Nous avons vérifié que les résultats obtenus ne dépendent pas du schéma choisi. Nous avons finalement retenu l'algorithme de RUNGE-KUTTA, plus stable que le prédicteur-correcteur et plus rapide en général que l'algorithme d'EULER, pour une précision au moins équivalente.

Le pas de temps est choisi de manière à limiter les temps de calcul, tout en assurant une bonne stabilité numérique. Pour capturer l'essentiel de la dynamique, il faut que le pas de temps soit petit devant les échelles de temps en jeu dans le système. Pour les gouttes de la première partie par exemple, les échelles de temps caractéristiques (temps capillaire, taux d'élongation, temps de relaxation viscoélastique, etc...) sont de l'ordre de l'unité, et le pas de temps est typiquement fixé à 0,01, dans les mêmes unités.

Ainsi, pour achever un calcul (par exemple pour obtenir une configuration stationnaire pour une goutte newtonienne axisymétrique en élongation), le temps de calcul est de l'ordre de quelques heures sur PC. Une parallélisation est envisageable, mais nous avons pu constater que cette technique n'était pas très adapté à notre architecture, notamment à cause des non localités introduites par les transformées de FOURIER : les temps de communications entre processeurs sont trop longs pour permettre une parallélisation réellement efficace.

2.3 Algorithme de résolution : champ de phase et hydrodynamique

Comme nous l'avons précisé dans le chapitre précédent, les équations que nous sommes amenés à résoudre sont des équations d'advection-diffusion. Nous pouvons ainsi utiliser des méthodes de calcul simples et robustes, bien connues par ailleurs, que nous allons néanmoins préciser ici.

2.3.1 Equation du champ de phase : cas non conservatif

Plusieurs termes apparaissent dans cette équation. Le premier est le terme diffusif, avec un coefficient de diffusion en $\epsilon^2\Gamma^{-1}$. Le laplacien est évalué dans l'espace de FOURIER, ce qui garantit une meilleure précision.

Le second terme est dérivé du potentiel en $(1-\theta^2)^2$. Ce terme ne pose pas non plus de problème particulier (il ne fait pas intervenir les dérivées spatiales de θ), il est traité explicitement.

Enfin, il reste le terme d'advection en $\mathbf{v}.\nabla\theta$. Nous utilisons préférentiellement l'espace de FOURIER pour calculer le gradient du champ de phase qui intervient ici. Plus précisément, nous montrons dans cette annexe des résultats (élongation et volume) relatifs à la déformation de gouttes newtoniennes en élongation. Pour ne pas alourdir le texte, nous nous contentons de préciser ici les conclusions de cette étude :

- les pertes en volume sont dans tous les cas limitées à quelques pourcents (2 à 2,5 en 3D axisymétrique). S'agissant d'un point important, nous y revenons dans l'étude consacrée aux gouttes viscoélastiques, dans la partie suivante. Ces pertes, qui sont aussi présentes dans le cadre d'une dynamique conservative à deux dimensions, sont dues aux erreurs systématiques commises dans le calcul du gradient de θ. Le calcul de ce terme dans l'espace de FOURIER réduit légérement ces pertes, qui sont dans tous les cas très faibles aux échelles de temps considérées (suffisantes pour observer un état stationnaire).

- la déformation de la goutte est très peu affectée par le choix de la méthode de calcul du terme d'advection (espace réel ou réciproque). Les variations relatives de ce paramètre sont limitées à moins de 0,1 %.
- un maillage trop fin provoque l'apparition d'instabilités numériques si le gradient est calculé dans l'espace de FOURIER. Ces instabilités sont liées à l'amplification des modes de petites longueur d'onde par les transformées de FOURIER. Le maillage résulte donc d'un compromis entre précision et stabilité.
- les pertes sont un peu plus importantes en régime axisymétrique, du fait des erreurs commises dans l'évaluation du laplacien (au niveau de l'axe de symétrie) et dans le calcul du champ de pression. Il est toutefois difficile de quantifier l'importance relative de ces deux effets, car ils restent de toute façon très faibles.

2.3.2 Equation du champ de phase : cas conservatif

Dans ce cas, nous avons un terme en laplacien carré à la place du terme diffusif, et le terme en $\theta\left(1-\theta^2\right)$ devient $\Delta\left(\theta\left(1-\theta^2\right)\right)$: l'équation d'advection du champ de phase s'écrit en effet (voir équation (1.27), page 21):

$$\partial_t\theta + \mathbf{v}.\nabla\theta = -\frac{1}{\Gamma}\left[\Delta\left(\theta\left(1-\theta^2\right) + c\left|\nabla\theta\right|\right) + \Delta^2\theta\right]. \tag{2.4}$$

Le terme d'ordre 4 est traité implicitement (dans l'espace de FOURIER afin de stabiliser l'algorithme (le traitement implicite des termes d'ordre pair est inconditionnellement stable). Le laplacien qui intervient dans le second terme est calculé lui aussi dans l'espace de FOURIER, de même que le terme d'advection.

2.3.3 Equation hydrodynamique

L'équation de NAVIER-STOKES est résolue par une méthode semi-implicite classique (voir annexe C). En effet, en présence de contraste de viscosités, nous voyons apparaître un terme en :

$$\nabla.\left[\eta\left(\nabla.\mathbf{v} + \mathbf{v}^T\right)\right] \tag{2.5}$$

avec :

$$\eta = \frac{1-\theta}{2}\eta^{(1)} + \frac{1+\theta}{2}\eta^{(2)} \tag{2.6}$$

Ce terme peut se décomposer en :

$$\nabla.\left[\eta\left(\nabla.\mathbf{v} + \mathbf{v}^T\right)\right] = \eta_{max}\Delta\mathbf{v} + \left(\eta - \eta_{max}\right)\Delta\mathbf{v} + \left(\nabla.\mathbf{v} + \mathbf{v}^T\right).\nabla\eta \tag{2.7}$$

avec η_{max} la valeur maximale de la viscosité dans le système. Ainsi, le premier terme en $\eta_{max}\Delta\mathbf{v}$ est traité de façon implicite, et les autres de façon explicite. Ceci nous permet d'utiliser des pas de temps raisonnables, puisque la partie implicite est inconditionnellement stable. La limitation supérieure est quant à elle liée (entre autre) à la nécessité de prendre en compte correctement les phénomènes dynamiques transitoires, comme nous l'avons mentionné plus haut.

Le point délicat concerne essentiellement les non-linéarités dues au terme d'advection d'une part, et d'autre part la contrainte forte d'incompressibilité. Nous avons pu nous affranchir des problèmes liés au terme en $\mathbf{v}.\nabla\mathbf{v}$ puisque les échelles de temps et de longueur en jeu dans nos systèmes permettent de négliger l'inertie devant la dissipation visqueuse : le nombre de REYNOLDS est en effet typiquement de l'ordre de 10^{-2}.

Pour ce qui concerne la contrainte d'incompressibilité, nous avons tiré parti à la fois du maillage structuré et des conditions aux limites périodiques pour utiliser une méthode spectrale basée naturellement sur les transformées de FOURIER [95]. Le principe est très simple : la condition de divergence nulle des vitesses, qui exprime pour les liquides incompressibles la conservation de la masse, devient dans l'espace de FOURIER :

$$\nabla.\mathbf{v} = 0 \Leftrightarrow \mathbf{k}.\mathbf{v}_k = 0 \tag{2.8}$$

avec $\mathbf{v}_k$ la k-ième composante de FOURIER du champ de vitesse. Dès lors, il suffit de résoudre l'équation de NAVIER-STOKES sans la contrainte d'incompressibilité, et de projeter ensuite le champ de vitesses obtenu sur l'espace normal à $\mathbf{k}$ grâce à l'opérateur suivant :

$$\mathbf{I} - \frac{\mathbf{k} \otimes \mathbf{k}}{\mathbf{k}^2}. \tag{2.9}$$

Ainsi, il n'est pas nécessaire de résoudre le champ de pression, puisque seul son gradient apparaît dans l'équation dynamique pour la vitesse. Ce gradient de pression étant colinéaire à $\mathbf{k}$, il sera systématiquement absorbé dans l'opération de projection. Le calcul des transformées de FOURIER étant particulièrement optimisé dans les librairies FFTW, cette partie est la plus rapide du programme.

En régime axisymétrique, il est possible de travailler dans un espace de dimension deux. Toutefois, la contrainte d'incompressibilité s'écrit de façon plus complexe qu'à deux dimensions, puisque c'est bien le volume du liquide qui est conservé, et non la surface (une déformation à surface constante d'une particule de fluide dans le plan de symétrie du système peut être associée à une variation de volume causée par les déformations dans la troisième direction d'espace). Nous utilisons alors une méthode de relaxation pour le champ de pression, décrite dans l'annexe C. Dans tous les cas, la contrainte d'incompressibilité est très bien vérifiée par notre algorithme, puisque la valeur moyenne

relative de la divergence des vitesses est inférieure à 0,001. Nous montrons dans l'annexe C que nos résulats ne sont pas modifiés si le critère d'arrêt de la routine de calcul de la pression est divisé par 10.

Par ailleurs, le domaine de résolution étant nécessairement fini, la question des conditions aux limites est légitime. Pour limiter les effets de taille finie, nous avons choisi d'imposer des conditions aux limites périodiques. Un tel choix est toujours possible aux bas nombres de REYNOLDS, puisque la linéarité des équations dynamiques pour le champ de vitesses nous permet de séparer les contributions périodiques des contributions non-périodiques, issues de l'écoulement imposé (cisaillement ou élongation). La périodicité s'applique donc au contre-écoulement causé par la présence d'une particule dans le système (goutte ou vésicule).

Deuxième partie

Elongation et rupture de gouttes viscoélastiques

Chapitre 1

Rhéologie des solutions de polymères

Dans ce premier chapitre, nous voulons rappeler les principales caractéristiques rhéologiques des solutions de polymères en écoulement. Dans un premier temps, nous rappellerons les résultats classiques essentiels sur les **polymères gaussiens**, puis nous présenterons quelques expériences illustrant comment l'ajout d'une fraction volumique même infinitésimale de polymères peut profondément modifier le comportement dynamique des solutions. Nous introduirons ensuite l'équation constitutive d'OLDROYD B que nous utiliserons dans toute la suite de cette partie. Deux approches coexistent et se complètent, la première, **macroscopique**, se base sur des considérations d'**objectivité** des contraintes que nous présenterons succintement. La seconde est **microscopique**, et nous insisterons davantage sur ce point qui nous permettra de relier les différents paramètres de l'équation constitutive à des quantités telles que la concentration en polymères ou la longueur des chaînes. Nous introduirons alors deux nombres importants, le nombre de DEBORAH[1] et le nombre de WEISSENBERG. Nous terminerons alors ce chapitre par une présentation rapide et non-exhaustive d'autres modèles, basés sur celui d'OLDROYD.

1.1 Les polymères gaussiens

Un **polymère** est une macromolécule de masse molaire souvent très élevée (jusqu'à 10^6 $g.mol^{-1}$ [23, 44]). Ces molécules consistent en une répétition à l'identique de N **monomères**, N pouvant aller jusqu'à 10^5. Parmis les plus communs, on peut citer le polyéthylène $(CH_2)_N$ ou le polystyrène, dont l'élément de base contient un noyau aromatique.

1. DEBORAH est une prophétesse de l'Ancien Testament, qui a affirmé que "les montagnes coulent devant les seigneurs". Ce nombre joue un rôle important dans la caractérisation des échelles de temps en rhéologie...

Les solutions de polymères sont très fréquemment rencontrées, aussi bien dans la vie quotidienne que dans l'industrie. Les premières applications connues des polymères sont très anciennes, puisque les égyptiens utilisaient déjà la gomme arabique pour stabiliser les peintures et les encres qu'ils utilisaient[2]... L'industrie plasturgique consomme chaque année plusieurs millions de tonnes de plastiques [28], dont la production dépasse celle des métaux. On conçoit alors que la compréhension du comportement dynamique des solutions de polymères puisse avoir un rôle important à ce niveau.

D'un point de vue fondamental, les solutions de polymères sont intéressantes également puisqu'elles combinent des effets dissipatifs (par viscosité) et élastiques. L'un des rôles majeurs de la rhéologie est d'ailleurs de décrire ces phénomènes couplés. Nous verrons par la suite quelques études expérimentales et modèles théoriques qui permettent de comprendre au moins en partie ces phénomènes. Par ailleurs, la longueur parfois très importante des chaînes de polymères peut induire des effets complexes en situation confinée. Ces effets dépassent largement le cadre de cette thèse, mais il faut mentionner un certain nombre d'études expérimentales sur molécules uniques sous cisaillement, qui révèlent une grande richesse de comportements statistiques, caractérisés par une compétition entre les composantes élongationnelle et rotationnelle de l'écoulement imposé [50, 154]. Cette compétition est d'ailleurs assez semblable à celle qui provoque la transition de bascule des vésicules, sur laquelle nous reviendrons dans la troisième partie de ce manuscrit. Certaines approches numériques tiennent compte à la fois des effets turbulents dans le liquide et de la déformation des chaînes de polymères, dans la limite des faibles concentrations [164]. Ces polymères provoquent une diminution de la trainée turbulente sur laquelle nous allons revenir à la fin de ce paragraphe.

Physiquement, les polymères peuvent exister sous 3 formes différentes [44] :

- **liquide** à haute température
- **vitreuse** en dessous d'une température critique appelée précisément **température de transition vitreuse**. C'est précisément cette phase qui est utilisée dans l'industrie plastique pour l'emballage par exemple.
- **cristalline** à basse température. En général la cristallisation n'est que partielle : des nodules cristallisés apparaissent ainsi au milieu d'une matrice amorphe

Les chaînes de polymères sont rarement simplement linéaires et présentent des ramifications nombreuses. D'autres polymères dits "copolymères diblocs" sont composés d'une alternance de blocs de monomères différents : $[A...A]_N [B...B]_M$. Ces polymères se placent préférentiellement à l'interface entre les phases liquides de A et B, et réduisent ainsi considérablement la tension de surface.

2. En l'occurence, c'est bien l'adsorption de chaînes de polymères sur les particules colloïdales qui stabilise le système en écrantant les interactions à courte portée [140].

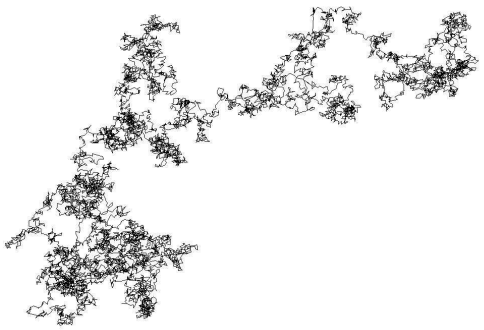


FIG. 1.1 – *Configuration typique d'un polymère gaussien (marche aléatoire, 10000 pas).*

La description statistique la plus élémentaire d'un polymère isolé est due à KUHN [93]. Cette approche consiste à assimiler la conformation moléculaire typique de la chaîne à une marche aléatoire tridimensionnelle (voir figure 1.1). Classiquement, si on appelle N_K le nombre de pas dans la marche aléatoire et b leur longueur, la distance moyenne entre les deux extrémités sera donnée par $b\sqrt{N_K}$. Connaissant le rayon de gyration moyen $R_0 = \langle \mathbf{R}^2 \rangle_0^{1/2}$ du polymère[3], ainsi que le nombre l de monomères et leur longueur P, les paramètres du modèle de KUHN seront choisis de manière à avoir :

$$\begin{cases} b^2 N_K = R_0^2 \\ \\ b N_K = lP \end{cases} \tag{1.1}$$

La quantité b dépend de la flexibilité de la chaîne, ou plus précisément de sa **longueur de persistance**, définie comme la longueur effective au-delà de laquelle deux portions peuvent être considérées comme indépendantes. Pour les macromolécules flexibles traditionnelles, cette longueur correspond à quelques monomères (5 à 10) [93], mais peut devenir très importante pour les molécules les plus rigides, comme l'ADN ou le virus de la mosaïque du tabac, plutôt assimilable à un batonnet rigide.

A l'équilibre, la probabilité $\Psi_0(\mathbf{R})d\mathbf{R}$ de trouver une extrémité de la chaîne entre $\mathbf{R}$ et $\mathbf{R}+d\mathbf{R}$ est simplement donnée par une distribution gaussienne [49] :

$$\Psi_0(\mathbf{R}) = \left(\frac{\beta}{\sqrt{\pi}}\right)^3 e^{-\beta^2 R^2} \tag{1.2}$$

3. La notation $\langle \cdots \rangle_0$ désigne une moyenne pondérée par la distribution de probabilités à l'équilibre, que nous allons introduire par la suite.

avec $\beta^2 = 3/(2N_K b^2)$. Un polymère qui obéira à une telle statistique sera dit **gaussien**. Remarquons d'ores-et-déjà qu'une difficulté essentielle surgit avec cette relation, qui semble autoriser des extensions infinies pour la chaîne. Nous aurons plusieurs fois l'occasion de revenir sur ce point important dans la suite de ce chapitre.

Il est alors possible d'exprimer l'élasticité de la chaîne. Plus précisément, le nombre Ω de configurations qui correspondent à un vecteur bout-à-bout $\mathbf{R}$ est simplement proportionnel à $\Psi_0(\mathbf{R})d\mathbf{R}$. Dès lors, l'entropie de la molécule sera donnée par $S = k_B \ln \Omega$:

$$S = k_B \left[-\beta^2 R^2 + 3 \ln \left(\frac{\beta}{\sqrt{\pi}} \right) + cste \right] \tag{1.3}$$

avec k_B la constante de BOLTZMANN. L'énergie libre sera alors simplement $\mathcal{F} = -TS$, et la force $\mathbf{F}$ nécessaire à une augmentation $d\mathbf{R}$ de la longueur de la chaîne sera égale à :

$$\mathbf{F} = -\nabla \mathcal{F} = 2k_B T \beta^2 \mathbf{R} \tag{1.4}$$

(T est la température). On obtient donc une relation linéaire entre la force et la déformation, et ainsi, les polymères gaussiens se comportent comme des ressorts linéaires. Nous verrons que cette relation (1.4) sera importante dans la dérivation microscopique des équations constitutives (voir paragraphe 1.3.2).

1.2 Les solutions de polymères

Les effets les plus spectaculaires des solutions de polymères sont dynamiques. Sans chercher l'exhaustivité, nous en avons regroupé ici quelques-uns qui illustrent bien certaines propriétés rhéologiques marquantes.

1.2.1 Les fonctions rhéologiques

Nous l'avons dit, l'une des vocations principales de la rhéologie consiste à relier les contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ aux taux de déformation appliqués, caractérisés par le tenseur $\mathbf{D}$:

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2} \left(\nabla \mathbf{v} + \nabla \mathbf{v}^T \right). \tag{1.5}$$

Les liquides dits **simples** sont très bien décrits par une relation linéaire $\boldsymbol{\sigma} = 2\eta \mathbf{D}$, avec η la viscosité. Cette relation traduit une dissipation instantanée de l'énergie apportée par l'écoulement [91]. Le cas des liquides de polymères est naturellement plus complexe. Deux effets se combinent alors et donnent lieu à une grande richesse de comportements. Le premier effet est purement

dissipatif. Il est essentiellement associé à la présence de solvant dans la solution, et ne diffère pas du cas newtonien. Le second est d'origine élastique, et trouve son origine dans l'élasticité des chaînes de polymères qui a été introduite de façon élémentaire dans le paragraphe précédent. De façon imagée, quand la solution sera mise sous contrainte, une partie de l'énergie va être instantanément dissipée sous forme visqueuse, et l'autre partie sera stockée sous forme élastique (la part d'énergie stockée dépendant notamment de la concentration en polymères). Les chaînes vont alors pouvoir se réorganiser pour permettre la relaxation de ces contraintes. Ce processus sera associé à une ou plusieurs échelles de **temps de relaxation** caractéristiques[4]. Nous verrons par la suite que les effets les plus spectaculaires apparaissent quand le temps typique de sollicitation est comparable à ces temps de relaxation.

En fait, une telle échelle de temps peut être définie pour tous les liquides, même simples. Les temps caractéristiques sont alors très courts (de l'ordre de la picoseconde), et sont difficilement accessibles expérimentalement. L'intérêt des solutions de polymères est d'introduire des échelles de longueur et de temps facilement accessibles aux sollicitations usuelles[5]. Si les fréquences de sollicitations sont faibles, il convient de parler de **régime newtonien**.

Expérimentalement, les principales mesures rhéologiques sont effectuées dans des écoulements de **cisaillement** :

$$\boldsymbol{D} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{1.6}$$

avec $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement appliqué. On montre que dans ce cas, la forme la plus générale que peut prendre le tenseur des contraintes est [23]:

$$\boldsymbol{\sigma}_p = \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & 0 \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{33} \end{pmatrix} \tag{1.7}$$

Pour les fluides incompressibles les termes diagonaux ne sont définis qu'à une constante isotrope près (la pression), c'est pourquoi on ne mesure en général que leurs différences. En supposant que le tenseur $\boldsymbol{\sigma}_p$ est symétrique, les **fonctions rhéologiques** caractéristiques du fluide sont au nombre de 3 :

- la **viscosité effective** , ou **viscosité de cisaillement**, notée η_{cis} et définie par :

4. En général, plusieurs temps apparaissent. En effet, si on assimile la molécule à une chaîne de ressorts, les modes propres sont en nombre infini. A la limite, il vaudrait mieux parler du **spectre de relaxation**.

5. D'autres liquides, dits **complexes**, présentent un tel intérêt. On peut citer par exemple les cristaux liquides, les mousses ou encore les émulsions (dont nous reparlerons dans la dernière partie de ce manuscrit)

$$\eta_{cis}\left(\dot{\gamma}\right) = \frac{\sigma_{12}}{\dot{\gamma}}. \tag{1.8}$$

Dans le cas newtonien, cette viscosité s'identifie bien à la viscosité dynamique usuelle.

- la **première** et la **seconde différence de contraintes normales**, définies par :

$$\begin{cases} N_1\left(\dot{\gamma}\right) = \left(\sigma_{11} - \sigma_{22}\right)/\dot{\gamma}^2 \\ \\ N_2\left(\dot{\gamma}\right) = \left(\sigma_{22} - \sigma_{33}\right)/\dot{\gamma}^2 \end{cases} \tag{1.9}$$

En général, la première différence de contraintes normales est essentiellement constante et positive. N_2 est plutôt négative, et le rapport N_2/N_1 vaut environ $-1/10$ [93].

A priori, ces fonctions dépendent du taux de cisaillement appliqué. Signalons simplement que la majorité des solutions de polymères présente un comportement **rhéofluidifiant**, c'est-à-dire que la viscosité effective est une fonction décroissante du taux de cisaillement appliqué. Cet effet est intimement lié à l'orientation des chaînes de polymères dans l'écoulement. Dans le régime newtonien, les contraintes normales sur un élément de fluide sont liées à la pression, donc isotropes. Par conséquent, N_1 et N_2 sont alors simplement nulles. En présence de polymères au contraire, l'alignement des chaînes va provoquer l'apparition d'une certaine anisotropie dans l'écoulement, et N_1 et N_2 ne seront alors pas nécessairement nulles.

Une dernière grandeur nous sera utile par la suite dans le cas d'écoulements **élongationnels**, caractérisés par un tenseur de taux de déformation :

$$\boldsymbol{D} = \begin{pmatrix} \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & -\dot{\gamma}/2 & 0 \\ 0 & 0 & -\dot{\gamma}/2 \end{pmatrix} \tag{1.10}$$

avec $\dot{\gamma}$ le taux d'élongation. La **viscosité élongationnelle** est alors définie par :

$$\eta_{el}\left(\dot{\gamma}\right) = \frac{\sigma_{11} - \sigma_{22}}{\dot{\gamma}}. \tag{1.11}$$

Dans le cas newtonien, cette quantité vaut $\eta_{el} = 3\eta$ (règle de TROUTON).

1.2.2 Phénoménologie

En présence de polymères, certains écoulements développent des instabilités de nature élastique, ces effets étant particulièrement marqués en présence d'une frontière libre [150]. Nous avons voulu en illustrer quelques-uns ici.

L'effet Weissenberg

Une première expérience intéressante consiste à placer un cylindre en rotation dans une solution de polymères. Dans le cas d'un liquide newtonien, les forces centrifuges tendent à expulser le liquide vers l'extérieur, et l'interface se creuse au niveau de l'axe de rotation. Si quelques *ppm* de polymères sont ajoutées dans la solution, l'effet s'inverse, et il est beaucoup plus marqué : le liquide tend cette fois à remonter le long de l'axe (figure 1.2). C'est la force de gravité qui va alors permettre l'apparition d'un état stationnaire.

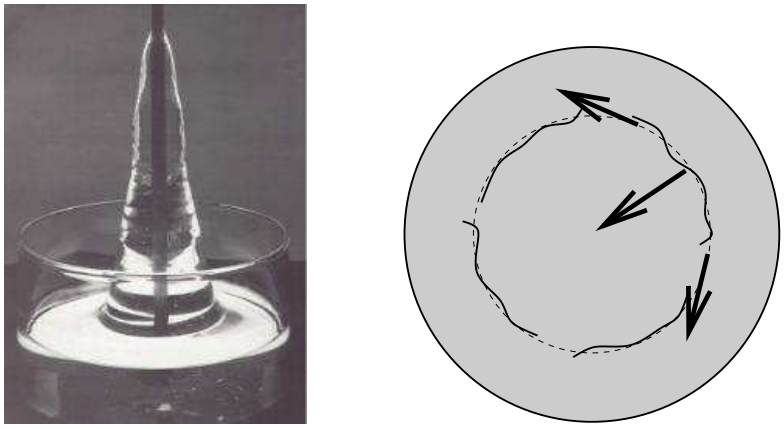


FIG. 1.2 – *Le phénomène de "rod climbing". Sur la figure de droite, nous voyons comment l'étirement des polymères le long d'une ligne de courant se traduit par l'apparition d'une force nette orientée vers l'axe de rotation.*

Ce phénomène est connu sous le nom d'effet WEISSENBERG, ou de "rod climbing". On peut le comprendre assez intuitivement en remarquant que le taux d'élongation tangentielle dans le liquide[6] provoque l'apparition de contraintes fortes sur les polymères, le long des lignes de courant. Nous avons donc une force nette orientée vers l'axe de rotation, qui provoque un mouvement du liquide vers l'intérieur. Ce mouvement est permis dans la mesure où l'interface séparant le liquide du milieu environnant est libre : l'incompressibilité du liquide se traduit alors par une montée du liquide, nettement visible sur la figure 1.2.

Le "die swell"

Le second effet est observé à l'extrusion d'un filament liquide en dehors d'un capillaire. Dans le cas d'un liquide newtonien, le diamètre du filament sera sensiblement égal au diamètre de l'orifice (voire même inférieur au grands

6. donné par la vitesse de rotation de l'axe

nombres de REYNOLDS[7]). Dans le cas viscoélastique au contraire, l'augmentation de diamètre peut atteindre 400 % [23] (voir figure 1.3).

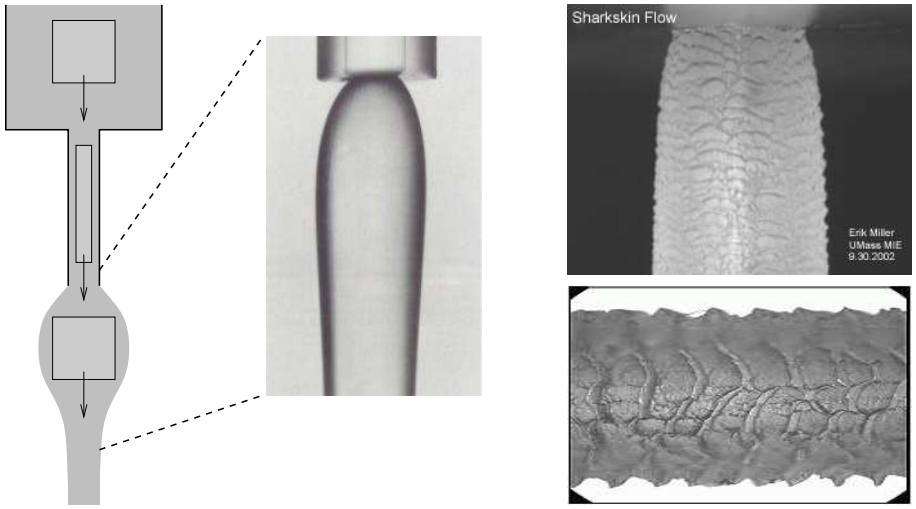


FIG. 1.3 – *Le phénomène de "die swell" (à gauche) et l'instabilité "peau de requin" (à droite, d'après http://www.ecs.umass.edu/mie/faculty/rothstein et http://polymers.msel.nist.gov/highlights/Sharkskin.html).*

Cet effet illustre une fois encore la présence d'effets élastiques dans le liquide. Un élément de volume va être étiré en passant du réservoir au capillaire. Si la traversée du tube est suffisamment courte (capillaire court ou débit important), les contraintes n'auront pas eu le temps de relaxer et il aura tendance à retrouver sa forme initiale à la sortie. Ceci va se traduire par une dilatation du jet.

Au niveau de l'interface entre le fluide et l'air, une instabilité peut également se développer, qui est bien connue dans l'industrie textile car elle peut provoquer la rupture des fibres (voir figure 1.3). Cette instabilité se traduit par l'apparition de modulations au niveau de l'interface, au-delà d'un débit critique [116, 131]. L'origine de cette instabilité est longtemps restée incomprise. En effet, l'écoulement de POISEUILLE qui se développe à l'intérieur du capillaire est linéairement stable. Il était alors difficile de comprendre par quel biais les modulations d'interface pouvaient apparaître à la sortie. Mais récemment [102], certains auteurs ont pu montrer que l'écoulement de POISEUILLE présentait une faible instabilité non linéaire (qui n'apparaît dans les calculs qu'au troisième ordre de perturbation), causée essentiellement par des effets de contraintes normales, donc, cette fois encore, élastiques.

7. Dans la limite purement inertielle, on saît que dans le tube, la pression est abaissée par l'effet BERNOULLI [91]. A la sortie, c'est donc la pression atmosphérique qui va provoquer un amincissement du liquide - jusqu'à 13 % [23].

Inhibition de la turbulence

L'ajout de polymères dans un liquide a aussi des effets dans les écoulements turbulents. L'effet le plus connu est l'effet TOMS [169] : l'ajout de quelques *ppm* de polymères se traduit par une réduction très importante de la force de trainée turbulente [164], qui peut être utilisée par exemple pour augmenter la portée des lances à incendie (voir figure 1.4).



FIG. 1.4 – *Illustration de l'effet* TOMS. *Dans les 2 cas présentés ici, le débit imposé est le même. Au premier plan, le liquide est simplement de l'eau, et 3 pompiers sont nécessaires pour maintenir la lance à incendie. Au second plan, quelques ppm de polymères ont été ajoutés, et non seulement la portée est sensiblement améliorée, mais 2 pompiers suffisent à maintenir la lance...*

Expérimentalement, les effets de la présence de polymères dans un écoulement turbulent bidimensionnel ont pu être mis en évidence récemment dans des films de savon en circulation autour d'un réseau de cylindres [5]. Curieusement, l'ajout de polymères se traduit essentiellement par une inhibition des transferts d'énergie aux grandes échelles, c'est-à-dire par une stabilisation des vortex à une échelle de l'ordre du *cm*.

Formation de filaments

Un dernier effet sur lequel nous reviendrons par la suite concerne la formation de filaments dans les systèmes de gouttes pendantes [4, 32]. Dans le cas newtonien, l'amincissement du col reliant la goutte à son support obéit à une loi de puissance en $(t - t_c)^{2/3}$ avec t_c le temps auquel la goutte se détache[8]. Dans le cas d'une solution de polymères (oxyde de polyétylène (PEO) dans la référence [4]), le comportement est radicalement différent (voir figure 1.5).

Aux temps courts, la dynamique est toujours autosimilaire, mais laisse place ensuite à un comportement exponentiel caractérisé par un seul temps caractéristique. La transition a lieu quand le taux d'élongation dans l'amincissement devient comparable au temps caractéristique de relaxation du polymère. Finalement, les auteurs ont mis en évidence le fait que l'ajout de quelques *ppm* de macromolécules pouvait suffire à inhiber la rupture de la

8. Ce type de comportement est connu sous le nom de "singularité en temps fini".

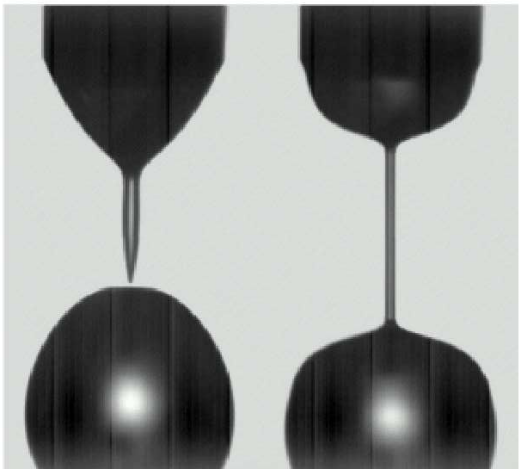


FIG. 1.5 – *Détachement d'une goutte d'eau (à gauche) et d'une solution de polymère (100 ppm PEO, à droite). D'après [4].*

goutte, en tout cas aux échelles de temps accessibles en laboratoire[9]. Ainsi, des filaments de plusieurs *cm* de long ont pu être observés, avec une largeur de l'ordre du μm [53].

D'un point de vue théorique, il est clair que la simple relation de proportionnalité qui relie les contraintes aux taux de déformation dans les liquides newtoniens doit être abandonnée. Une échelle de temps (au moins) doit être introduite dans l'équation constitutive afin de tenir compte des effets élastiques. Le prochain paragraphe va nous permettre d'introduire l'équation la plus simple qui réponde à cette exigence, l'équation d'OLDROYD B.

1.3 Le modèle d'Oldroyd B

L'une des premières tentatives de décrire la rhéologie des écoulements de polymères remonte à MAXWELL [23, 131]. L'idée très simple consiste à superposer linéairement un comportement élastique (relation linéaire entre les contraintes et les **déformations**) à un comportement visqueux (relation linéaire entre les contraintes et les **taux de déformation**). Dans l'hypothèse d'un seul temps caractéristique de relaxation τ_p, nous aurons donc :

$$\tau_p \mathcal{D}_t \boldsymbol{\sigma}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = 2\eta_p \mathbf{D} \tag{1.12}$$

9. Dans le cas présent, la principale limitation était la hauteur maximale accessible expérimentalement, puisque c'est la gravité qui provoque l'élongation de la goutte.

avec η_p la viscosité de la solution ($\mathcal{D}_t$ représente la dérivée hydrodynamique classique). Aux temps longs devant τ_p, le premier terme est négligeable, et la solution se comporte comme un liquide newtonien, alors qu'aux temps courts, ce terme domine au contraire, et on retrouve bien un comportement élastique. Les contraintes viscoélastiques ainsi déterminées sont alors intégrées dans l'équation de NAVIER-STOKES qui, en l'absence de forces volumiques extérieures, s'écrira :

$$\eta \left(\partial_t \mathbf{v} + \mathbf{v}.\nabla\mathbf{v}\right) = \nabla.\left(\boldsymbol{\sigma}_p + 2\eta_s \mathbf{D}\right) - \nabla P \tag{1.13}$$

avec η_s la viscosité du solvant (newtonien) dans lequel évoluent les polymères. L'essentiel des phénomènes semble être capturé, mais nous allons voir que ce modèle contient un certain nombre de pathologies mathématiques.

Avant cela, il nous faut mentionner l'approche de BOLTZMANN qui suppose une relation linéaire entre les contraintes et les taux de déformation, mais non locale en temps :

$$\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x},t) = 2\int_{-\infty}^{t} G(t-s)\mathbf{D}(\mathbf{x},s)ds. \tag{1.14}$$

La fonction $G(t)$ est appelée **module de relaxation**, et on vérifie facilement que si cette fonction s'écrit $G(t) = \eta_p e^{-\tau_p t}$, alors on retrouve bien la solution de l'équation (1.12). Toutefois, cette dernière approche présente l'avantage de pouvoir inclure tout un spectre de temps de relaxation.

1.3.1 Approche macrocopique

L'équation (1.12) n'est pas satisfaisante car elle ne répond pas au **principe d'objectivité des contraintes** [23, 93]. Ce principe préconise l'indépendance de la **relation** entre les contraintes et les taux de déformation vis-à-vis de tout changement de référentiel. Par ailleurs, on ne s'attend pas à ce que les propriétés intrinsèques du liquide dépendent de l'état de rotation du référentiel d'observation. Or l'équation de MAXWELL (1.12) appliquée à un cisaillement linéaire dans un référentiel en rotation uniforme nous permet de conclure que la viscosité **intrinsèque** du liquide, c'est-à-dire en l'absence de cisaillement, dépend de la vitesse de rotation, ce qui est bien sûr tout-à-fait inacceptable [23].

OLDROYD fut le premier à poser les principes de base auxquels doit répondre toute équation constitutive [108, 115]. En particulier, une telle équation doit être **locale**, et basée sur l'histoire du tenseur de taux de déformation de la particule de fluide considérée. Enfin, elle doit être basée sur un système de coordonnées **convectées**, c'est-à-dire transportées avec la particule et se déformant avec elle. Ce dernier point est directement relié à la notion d'objectivité. Le cas le plus général proposé par OLDROYD, que nous ne présenterons pas ici, est une équation non linéaire à 8 constantes [23].

A partir de ces considérations macroscopiques, il est possible de modifier l'équation de MAXWELL pour obtenir [23, 93] :

$$\tau_p \overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = 2\eta_p \mathbf{D}, \tag{1.15}$$

connue sous le nom d'équation d'OLDROYD B. Dans cette expression, la quantité $\overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p$ représente la **dérivée convective supérieure** :

$$\overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p = \partial_t \boldsymbol{\sigma}_p + \mathbf{v}.\nabla\boldsymbol{\sigma}_p - \nabla\mathbf{v}^T.\boldsymbol{\sigma}_p - \boldsymbol{\sigma}_p.\nabla\mathbf{v} \tag{1.16}$$

et c'est elle qui garantit l'invariance par rotation du tenseur des contraintes. Cette équation repose également sur une base microscopique, que nous allons détailler maintenant.

1.3.2 Approche microscopique

Plusieurs niveaux d'approximation sont envisageables pour obtenir une description rhéologique des liquides de polymères à partir de considérations microscopiques [45, 49, 131] :

- les modèles de **réseaux**, dans lesquels les polymères sont traités comme des ressorts liés entre eux par des liaisons fragiles. Le couplage avec l'écoulement résulte d'une modification dans la configuration des jonctions.
- les modèles **dilués**, dans lesquels les macromolécules sont traitées séparément. Le couplage avec l'hydrodynamique se fait cette fois par le biais d'une friction visqueuse.
- les modèles de **reptation**, qui traitent les polymères de façon individuelle. Mais dans ce cas, le mouvement du polymère est contraint latéralement par les autres molécules, qui définissent un "tube" effectif à l'intérieur duquel le polymère peut se déplacer. Ces modèles sont surtout utilisés pour les polymères fondus, donc assez concentrés.

Le modèle de Rouse

Le modèle le plus simple auquel nous allons nous limiter ici consiste à assimiler le polymère à un ressort connectant 2 billes de rayon a, plongées dans un solvant de viscosité η_s [93, 131]. Ces billes peuvent être interprétées comme deux parties non dépliées du polymère [10]. La force associée au ressort sera simplement donnée par la relation **linéaire** (1.4). Au niveau des billes, nous aurons donc 3 forces : la **force de rappel** due au ressort, la **friction** avec le liquide environnant, et un terme **stochastique** causé par le mouvement

10. parfois désignées par le terme de "blob".

brownien. Dans la limite diluée, il suffit de considérer une chaîne isolée, et la force de friction aura la forme suivante :

$$\mathbf{f}_i = -\zeta\left(\dot{\mathbf{r}}_i - \mathbf{v}(\mathbf{r}_i)\right) \tag{1.17}$$

avec $\dot{\mathbf{r}}_i$ la vitesse de la bille (i =1 ou 2) et $\mathbf{v}(\mathbf{r}_i)$ la vitesse locale du fluide. ζ est donné en première approximation par la formule de STOKES $\zeta = 6\pi\eta_s a$. Le mouvement de chaque bille est donc donné par :

$$\begin{cases} -\zeta\left(\dot{\mathbf{r}}_1 - \mathbf{v}(\mathbf{r}_1,t)\right) + 2k_BT\beta^2\mathbf{R} = \mathbf{A}_1 \\ \\ -\zeta\left(\dot{\mathbf{r}}_2 - \mathbf{v}(\mathbf{r}_2,t)\right) - 2k_BT\beta^2\mathbf{R} = \mathbf{A}_2 \end{cases} \tag{1.18}$$

avec $\mathbf{A}_i$ la force brownienne sur la bille i. Aux temps longs, l'inertie peut être négligée dans ces équations dynamiques [93]. Le vecteur $\mathbf{R}$ est simplement donné par $\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$. Une approximation supplémentaire est faite alors en linéarisant l'écoulement au niveau de la chaîne, ce qui se traduit par :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}_2,t) = \mathbf{v}(\mathbf{r}_1,t) + \mathbf{R}.\nabla\mathbf{v}. \tag{1.19}$$

Dès lors, en soustrayant les 2 équations (1.18) on obtient une équation stochastique de type LANGEVIN :

$$\zeta\left(\dot{\mathbf{R}} - \mathbf{R}.\nabla\mathbf{v}\right) + 4k_BT\beta^2\mathbf{R} = \mathbf{A} \tag{1.20}$$

avec $\mathbf{A} = \mathbf{A}_2 - \mathbf{A}_1$. La distribution de probabilités pour la longueur des chaînes n'est plus donnée par $\Psi_0(\mathbf{R})$ puisque nous sommes en dehors de l'équilibre. A partir de l'équation (1.20), il est possible d'obtenir une équation pour cette nouvelle densité de probabilité que nous noterons $\Psi(\mathbf{R},t)$. Il s'agit d'une équation de FOKKER-PLANCK donnée par :

$$\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{R},t) = -\nabla\left(a(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{R},t)\right) + \frac{1}{2}\Delta\left(b(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{R},t)\right). \tag{1.21}$$

$a(\mathbf{r})$ est la **fonction de dérive**, définie à partir du champ de forces appliqué sur la particule (ici, la force de rappel due aux ressorts et la friction visqueuse), et $b(\mathbf{r})$ est la **fonction de diffusion**, liée au terme brownien de l'équation de LANGEVIN. Pour aller plus loin, nous pouvons raisonnablement assimiler $\mathbf{A}$ à un bruit blanc :

$$\langle\mathbf{A}(t_1)\mathbf{A}(t_2)\rangle = \mathcal{K}\delta(t_1 - t_2). \tag{1.22}$$

$\mathcal{K}$ est une constante qui est déterminée à partir de l'équation de diffusion pour la densité de probabilité $\Psi(\mathbf{R},t)$, en l'absence de force supplémentaire. Dans ce cas, nous obtenons alors d'un processus de WIENER défini par :

$$\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{R},t) = \frac{\mathcal{K}}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2}\Psi(\mathbf{R},t). \tag{1.23}$$

La relation d'EINSTEIN nous permet alors d'écrire $\mathcal{K} = 4k_BT/\zeta$. On montre enfin que la fonction de dérive s'écrit (il suffit de moyenner l'équation de LANGEVIN sur un intervalle temporel petit [100]) :

$$a(\mathbf{r}) = \mathbf{R}.\nabla\mathbf{v} - \frac{4k_BT\beta^2}{\zeta}\mathbf{R} \tag{1.24}$$

et finalement :

$$\frac{\partial\Psi}{\partial t} + \nabla.\left[\mathbf{R}.\nabla\mathbf{v}\Psi - \frac{4k_BT\beta^2}{\zeta}\mathbf{R}\Psi - \frac{2k_BT}{\zeta}\nabla\Psi\right] = 0. \tag{1.25}$$

La résolution complète de cette équation est très complexe, même si quelques progrès ont été faits dans ce sens (voir [131] et les références internes). En pratique, la stratégie consiste à ne résoudre qu'un système d'équations ne faisant intervenir que les premiers moments de la fonction $\Psi(\mathbf{R},t)$, dans le cadre d'approximations de fermeture adaptées. Ce sujet dépassant largement le cadre de cette thèse, nous n'insisterons pas davantage, d'autant plus que nous allons voir qu'il n'est pas nécessaire de résoudre explicitement (1.25) pour obtenir les contraintes dans le liquide.

Des densités de probabilités aux contraintes

En effet, si on désigne par ν la densité de chaînes dans un élément de fluide, alors $\nu\Psi(\mathbf{R})d\mathbf{R}$ sera le nombre de chaînes ayant un vecteur bout-à-bout $\mathbf{R}$. Le nombre de chaînes qui **traversent** une face d'un élément de volume sera donné par $(\mathbf{n}.\mathbf{R})\,\nu\Psi(\mathbf{R})d\mathbf{R}$, avec $\mathbf{n}$ le vecteur normal à la face considérée[11]. Dès lors, puisque la force exercée par les chaînes sur la face de l'élément de fluide peut s'écrire $\boldsymbol{\sigma}_p.\mathbf{n}$ avec $\boldsymbol{\sigma}_p$ le tenseur des contraintes, nous aurons finalement :

$$\boldsymbol{\sigma}_p = 2k_BT\nu\beta^2\int \mathbf{R}\otimes\mathbf{R}\Psi(\mathbf{R})d\mathbf{R} \tag{1.26}$$

(nous avons utilisé la relation (1.4) pour la force associée aux chaînes de polymères). Ainsi, les contraintes viscoélastiques dépendent bien de l'orientation des chaînes de polymères, ainsi que nous avons déjà eu l'occasion de le mentionner dans le paragraphe précédent. Nous pouvons alors obtenir une relation sur la moyenne $\int \mathbf{R}\otimes\mathbf{R}\Psi(\mathbf{R})d\mathbf{R}$ en multipliant (1.25) par $\mathbf{R}\otimes\mathbf{R}\Psi(\mathbf{R})$. Après quelques intégrations par partie, et en utilisant le fait que la probabilité d'avoir une molécule infiniment étirée est très faible ($\Psi(\mathbf{R}) \to 0$ quand $|\mathbf{R}| \to +\infty$), même en dehors de l'équilibre, on obtient l'équation suivante pour le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}_p$:

$$\frac{\zeta\beta^2}{8k_BT}\overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = \nu k_BT\boldsymbol{\delta} \tag{1.27}$$

11. $\mathbf{n}.\mathbf{R}$ est la longueur de la chaîne projetée dans la direction $\mathbf{n}$, et s'identifie avec la probabilité d'intersection dans la limite $\mathbf{n}.\mathbf{R} \ll 1$ [93]

avec $\boldsymbol{\delta}$ le tenseur unité. En remarquant que $\overset{\nabla}{\boldsymbol{\delta}} = -2\mathbf{D}$, on obtient facilement l'équation d'OLDROYD B (1.15), avec :

$$\tau_p = \frac{\zeta\beta^2}{8k_BT} \quad \text{et} \quad \eta_p = \frac{\zeta\beta^2\nu}{8}. \tag{1.28}$$

En supposant une relation de STOKES pour le coefficient de frottement ($\zeta \propto \eta_s\beta$) et en assimilant β au rayon de gyration moyen R_0 du polymère, on obtient :

$$\tau_p \propto \frac{\eta_s R_0^3}{k_BT} \quad \text{et} \quad \eta_p = \eta_s R_0^3 \nu \tag{1.29}$$

avec η_s la viscosité du solvant. La limite newtonienne correspond alors soit à $\tau_p \to 0$, soit à $\eta_p \to 0$. Pour une température T donnée, le premier cas correspond à un rayon de gyration négligeable (la taille des polymères tend vers 0 : ils ne sont alors plus discernables de molécules "traditionnelles"), alors que le second correspond à une fraction volumique qui tend vers 0 ($R_0^3\nu \to 0$). Ces deux conditions sont donc d'origines physiques différentes. En d'autres termes, le temps de relaxation des polymères n'est pas la seule caractéristique de la viscoélasticité. La fraction volumique des macromolécules est également importante. Notons également qu'il est possible d'obtenir une expression pour la valeur moyenne de $\mathbf{R}^2$ [23]:

$$\frac{\langle \mathbf{R}^2 \rangle}{\langle \mathbf{R}^2 \rangle_0} = 1 + \frac{\tau_p\dot{\gamma}\left(\eta_p + \eta_s\right)}{3\eta_p}\mathrm{Tr}\left(\boldsymbol{\sigma}_p\right). \tag{1.30}$$

La trace du tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}_p$ est donc une mesure directe de l'élongation locale des chaînes dans la solution. Pour finir, notons que les équations (1.15) que nous venons d'écrire décrivent la contribution des polymères aux contraintes dans le liquide. Si on tient compte du solvant, que nous supposerons newtonien, alors les contraintes totales s'écriront plutôt :

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}_p + \boldsymbol{\sigma}_s \tag{1.31}$$

avec $\boldsymbol{\sigma}_s = 2\eta_s\mathbf{D}$. Il est possible d'obtenir une équation dynamique pour ce tenseur $\boldsymbol{\sigma}$ à partir de (1.15), et on montre facilement que :

$$\tau_p \overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}} + \boldsymbol{\sigma} = 2\eta\left(\mathbf{D} + \tau_r \overset{\nabla}{\mathbf{D}}\right) \tag{1.32}$$

avec $\eta = \eta_s + \eta_p$ la viscosité totale du liquide et $\tau_r = \eta_s\tau_p/\eta$. Les équations (1.15-1.31) et (1.32) sont complètement équivalentes.

A partir du temps de relaxation τ_p et de la fréquence typique de sollicitation $\dot{\gamma}$, il est possible de construire un nombre sans dimension qui va quantifier l'importance des effets élastiques dans le liquide. Il s'agit du nombre de WEISSENBERG Wi défini par :

$$Wi = \tau_p \dot{\gamma}. \tag{1.33}$$

Si ce nombre Wi est très faible, alors les effets élastiques seront négligeables, et le liquide pourra être considéré comme newtonien. Au contraire, si ce nombre devient de l'ordre de l'unité ou supérieur, alors les effets élastiques seront dominants. En l'absence de forçage extérieur, comme ce sera le cas dans notre étude consacrée à la rupture de gouttes viscoélastiques en relaxation, les effets non newtoniens seront plutôt quantifiés par un nombre de DEBORAH $De = \tau_p/\tau_{intr}$ avec τ_{intr} un temps intrinsèque au système (typiquement, dans le cas des gouttes, il s'agira du temps capillaire $\eta R/\Sigma$). Sans contrainte appliquée, des effets viscoélastiques peuvent bien sûr apparaître, mais le nombre de WEISSENBERG est nul. Ce n'est pas le cas alors pour celui de DEBORAH.

1.3.3 Prédictions rhéologiques

La confrontation directe avec les résultats expérimentaux peut se faire en cisaillement. Dans l'état stationnaire, il est possible de résoudre analytiquement l'équation (1.15) et d'obtenir les résultats suivants :

- **viscosité effective** : $\eta_{cis} = \eta_p$. Aucun comportement rhéofluidifiant n'est à attendre dans ce cas.
- **première différence de contraintes normales** : $N_1 = 2\eta_p\tau_p$
- **deuxième différence de contraintes normales** : $N_2 = 0$

Expérimentalement, nous l'avons vu, on s'attend en général à observer un comportement rhéofluidifiant, et un rapport N_2/N_1 de l'ordre de $-1/10$. Toutefois, certains fluides, dits de BOGER, sont assez bien décrits par un modèle d'OLDROYD B [150]. Il s'agit en général de solutions de polymères de haut poids moléculaire, en solution dans un solvant très visqueux (les temps de relaxation typique seront alors de l'ordre de la seconde). Par exemple, il pourra s'agir de polyisobutylène (PIB) dans du polybutène (PB). La concentration en polymères est suffisamment élevée pour que les interactions soient bien présentes en écoulement.

En dessous d'une centaine de Hz, la viscosité effective peut être considérée comme constante [150]. N_1 est constante entre 0,1 et 10 Hz, puis décroît algébriquement comme $\dot{\gamma}^{-\alpha}$ avec α compris entre 1/3 et 1. Enfin, N_2 est très faible sur toute la gamme de fréquences comprises entre 0,1 et 100 Hz.

Il faut néanmoins souligner un point important. Dans un écoulement d'élongation, la viscosité élongationnelle prédite par le modèle d'OLDROYD B est donnée par :

$$\eta_{el} = \frac{2\eta_p}{1 - 2\tau_p\dot{\gamma}} + \frac{\eta_p}{1 + \tau_p\dot{\gamma}} \tag{1.34}$$

avec $\dot{\gamma}$ le taux d'élongation appliqué. Une divergence est clairement identifiable pour $\dot{\gamma} = 1/(2\tau_p)$. Physiquement, un tel comportement est pathologique, même si d'un point de vue théorique, il est possible de montrer qu'un écoulement stationnaire peut présenter de telles divergences localisées [128]. En effet, si en ces points la divergence de la contrainte est nulle, l'effet sur l'écoulement sera nul lui aussi. L'origine de cette singularité est liée à la densité de probabilité $\Psi_0(\mathbf{R})$ pour la conformation du polymère gaussien, exprimée par la relation (1.2), page 37 [23]. Comme nous l'avions déjà mentionné à ce niveau, cette probalitité n'est pas nulle pour une chaîne infiniment étirée : au-delà d'un certain seuil d'élongation, les polymères deviennent infinis. Signalons enfin que numériquement, cette divergence peut être à l'origine de difficultés sérieuses. Il conviendra donc d'être prudent au moment de l'interprétation des résultats obtenus avec un tel modèle.

1.4 Vers une complexité croissante des modèles

Naturellement, la description rhéologique des liquides viscoélastiques ne se limite pas à l'équation d'OLDROYD B. De nombreux autres modèles existent, et nous voulons en présenter quelques-uns ici.

1.4.1 Dérivées convective inférieure et de Jaumann

A partir des considérations macroscopiques évoquées dans le paragraphe 1.3.1, il est possible d'obtenir 2 autres équations qui ne diffèrent de celle d'OLDROYD B que par la forme de la dérivée temporelle.

La dérivée convective inférieure

L'équation constitutive est donnée par :

$$\tau_p \overset{\triangle}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = 2\eta_p \mathbf{D}, \tag{1.35}$$

Cette équation est connue sous le nom d'OLDROYD A. La quantité $\overset{\triangle}{\boldsymbol{\sigma}}_p$ est définie par :

$$\overset{\triangle}{\boldsymbol{\sigma}}_p = \partial_t \boldsymbol{\sigma}_p + \mathbf{v}.\nabla\boldsymbol{\sigma}_p + \nabla\mathbf{v}.\boldsymbol{\sigma}_p + \boldsymbol{\sigma}_p.\nabla\mathbf{v}^T \tag{1.36}$$

Cette équation n'est pratiquement jamais utilisée, parce qu'elle ne possède pas de base microscopique, et qu'elle présente le même type de pathologie que celle d'OLDROYD B.

La dérivée de Jaumann

Cette fois, l'équation constitutive sera donnée par :

$$\tau_p \overset{\diamond}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = 2\eta_p \mathbf{D}, \tag{1.37}$$

avec

$$\overset{\diamond}{\boldsymbol{\sigma}}_p = \partial_t \boldsymbol{\sigma}_p + \mathbf{v}.\nabla \boldsymbol{\sigma}_p + (\boldsymbol{\omega}.\boldsymbol{\sigma}_p) + (\boldsymbol{\omega}.\boldsymbol{\sigma}_p)^T . \tag{1.38}$$

En d'autres termes, nous avons simplement $2\ \overset{\diamond}{\boldsymbol{\sigma}}_p = \overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \overset{\triangle}{\boldsymbol{\sigma}}_p$. Dans cette dérivée, connue sous le nom de dérivée de JAUMANN, la quantité $\boldsymbol{\omega}$ représente la vorticité locale dans le fluide :

$$\boldsymbol{\omega} = \frac{1}{2}\left(\nabla \mathbf{v} - \nabla \mathbf{v}^T\right). \tag{1.39}$$

Cette expression apparaît naturellement dans la description rhéologique du sang [51] ou d'une vésicule isolée soumise à un cisaillement [105].

Nous avons regroupé dans le tableau 1.1 les différentes prédictions de ces 3 modèles en cisaillement, avec Wi le nombre de WEISSENBERG que nous avons déjà introduit.

Paramètre	OLDROYD A	OLDROYD B	JAUMANN
Viscosité	$\eta_{cis} = \eta_p$	$\eta_{cis} = \eta_p$	$\eta_{cis} = \eta_p/(1+Wi^2)$
N_1	$N_1 = 2\eta_p\tau_p$	$N_1 = 2\eta_p\tau_p$	$N_1 = 2\eta_p\tau_p/(1+Wi^2)$
N_2	$N_2 = -2\eta_p\tau_p$	$N_2 = 0$	$N_2 = -\eta_p\tau_p/(1+Wi^2)$

TAB. 1.1 – *Prédictions rhéologiques des modèles d'*OLDROYD A *et* B*, et de* JAUMANN*, en cisaillement stationnaire.*

En élongation, nous aurons plutôt :

- OLDROYD A :

$$\eta_{el} = \frac{2\eta_p}{1+2\tau_p\dot{\gamma}} + \frac{\eta_p}{1-\tau_p\dot{\gamma}}. \tag{1.40}$$

  Cette fois, la divergence a lieu en $\dot{\gamma} = 1/\tau_p$.

- OLDROYD B :

$$\eta_{el} = \frac{2\eta_p}{1-2\tau_p\dot{\gamma}} + \frac{\eta_p}{1+\tau_p\dot{\gamma}} \tag{1.41}$$

  avec une divergence déjà évoquée en $\dot{\gamma} = 1/(2\tau_p)$.

- JAUMANN :

$$\eta_{el} = 3\eta_p. \tag{1.42}$$

On retrouve ici la règle de TROUTON.

Le modèle d'OLDROYD B est réaliste pour décrire les propriétés rhéologiques de certains liquides, et comme il repose également sur une base moléculaire, il est généralement utilisé comme point de départ pour les études numériques sur les liquides viscoélastiques. C'est donc ce modèle que nous utiliserons par la suite. Certaines approches, que nous allons présenter maintenant, permettent de remédier aux divergences pathologiques de ce modèle. Toutefois, il était plus raisonnable de notre point de vue de commencer ces études avec une équation constitutive simple.

1.4.2 Développements perturbatifs

A partir des équations viscoélastiques de type OLDROYD B, il est possible d'obtenir une relation entre $\boldsymbol{\sigma}_p$ et les puissances du tenseur $\mathbf{D}$ de taux de déformation. Ce développement est exact dans la limite $De \to 0$ et peut s'écrire, à l'ordre 3 [23] :

$$\boldsymbol{\sigma}_p = \boldsymbol{\sigma}_p^{(0)} + De\boldsymbol{\sigma}_p^{(1)} + De^2\boldsymbol{\sigma}_p^{(2)} + \mathcal{O}\left(De^3\right) \tag{1.43}$$

avec :

$$\begin{cases} \boldsymbol{\sigma}_p^{(0)} = 2\mathbf{D} \qquad \text{(contribution newtonienne)} \\ \\ \boldsymbol{\sigma}_p^{(1)} = -2\overset{\nabla}{\mathbf{D}} - 4b_{11}\mathbf{D}.\mathbf{D} \\ \\ \boldsymbol{\sigma}_p^{(2)} = 2b_3\overset{\nabla\nabla}{\mathbf{D}} + 4b_{12}\left(\mathbf{D}.\overset{\nabla}{\mathbf{D}} + \overset{\nabla}{\mathbf{D}}.\mathbf{D}\right) + 8b_{1:11}\left(\mathbf{D}:\mathbf{D}\right).\mathbf{D} \end{cases} \tag{1.44}$$

avec b_3, b_{11}, b_{12} et $b_{1:11}$ des constantes déterminées à partir des paramètres rhéologiques du liquide : $b_{11} = -2N_2/N_1$, etc... La rhéofluidité est déterminée par $b_{12} - b_{1:11}$ [23], et n'apparaît donc pas à l'ordre 2.

1.4.3 Réponse non linéaire des chaînes élastiques

La réponse linéaire que nous avons utilisée pour la dérivation du modèle d'OLDROYD B est valable pour les faibles déformations des chaînes. Une expression plus générale serait [128] :

$$\mathbf{F}\left(\mathbf{R}\right) = \frac{k_B T}{b}\mathcal{L}^{-1}\left(\frac{|\mathbf{R}|}{N_K b}\right)\mathbf{R} \tag{1.45}$$

avec b la longueur des monomères et N_K leur nombre, au sens de KUHN (voir page 37). $\mathcal{L}(x)$ est la fonction de LANGEVIN :

$$\mathcal{L}(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}. \tag{1.46}$$

Avec cette relation, les extensions sont nécessairement inférieures à $N_K b$, la longueur étendue de la chaîne. Une autre relation plus simple consiste à écrire :

$$\mathbf{F}(\mathbf{R}) = 2k_B T\beta^2 \frac{\mathbf{R}}{1 - (\mathbf{R}/N_K b)^2} \tag{1.47}$$

qui a le même effet mais en ayant l'avantage de la simplicité. Dans les deux cas, l'effet escompté est bien obtenu, puisque les extensions infinies des chaînes de polymères sont supprimées. De telles chaînes sont souvent désignés comme des ressorts "FENE", pour "Finite Extendable Nonlinear Elastic". Injectés dans l'équation (1.18), la relation (1.47) conduit aux modèles de PHAN-THIEN/TANNER [23] ou de CHILCOTT-RALLISON [31]. Numériquement, cette solution a permis l'étude de problèmes à de grands taux de déformation locale [31].

Dans tous les cas cependant, une simplification importante est effectuée pour rendre les modèles exploitables. La longueur du ressort est en effet remplacée par sa valeur moyenne dans le préfacteur non linéaire de la relation force-extension. Le carré de cette valeur moyenne est donné par la trace du tenseur $\int \Psi \mathbf{R}\mathbf{R} dR$ (approximation de PETERLIN) [131]. Si on appelle $\mathbf{A}$ cette quantité, qui est simplement proportionnelle au tenseur des contraintes, l'équation de FENE s'écrira :

$$\tau_p \overset{\nabla}{\mathbf{A}} + \frac{\mathbf{A} - \mathbf{I}}{1 - tr(\mathbf{A})/L^2} = \mathbf{0} \tag{1.48}$$

avec L la longueur maximale des polymères. Dans la limite $L \to +\infty$, on retrouve bien le modèle d'OLDROYD B.

Naturellement, beaucoup d'autres modèles existent, et il n'est pas question de les passer tous en revue ici. Nous renvoyons donc le lecteur intéressé aux ouvrages de référence sur le sujet pour des informations plus complètes [23, 93].

Chapitre 2

Elongation de gouttes viscoélastiques

Ainsi que nous l'avons déjà mentionné dans l'introduction, l'étude du comportement dynamique de gouttes dans des écoulements bien contrôlés constitue un premier pas vers la compréhension de la rhéologie des liquides diphasiques, ainsi que de leurs propriétés de mélange [53]. Dans ce chapitre, nous allons considérer le cas d'une goutte **viscoélastique** en élongation. Après avoir posé les équations dynamiques que nous avons résolues numériquement, nous allons rapidement passer en revue le comportement dynamique de gouttes **newtoniennes** dans différents types d'écoulements. Nous l'avons vu dans le chapitre précédent, deux paramètres importants vont nous être utiles pour décrire la viscoélasticité de la goutte, une viscosité η_p et un temps de relaxation τ_p. Le cas newtonien ($\tau_p = 0$) pourra donc être directement confronté à certaines prédictions analytiques, notamment celles de Barthes-Biesel & Acrivos [7].

Dans le cas viscoélastique, nous avons progressivement augmenté le nombre de Deborah (de 0 à 10). Aux faibles nombres capillaires, nous verrons qu'un état stationnaire est bien défini. Dans certaines conditions que nous détaillerons alors, nous verrons qu'une inversion de courbure localisée peut être mise en évidence le long de l'axe d'élongation. Ce phénomène peut être compris, au moins qualitativement, à partir de la localisation des contraintes viscoélastiques.

Au-delà d'un nombre capillaire critique Ca_c, les solutions stationnaires n'existent plus. La goutte va alors finir par casser, et le prochain chapitre sera réservé à une discussion plus spécifique de ces problèmes de rupture en régime viscoélastique.

2.1 Modèle numérique

Nous allons donc considérer la déformation d'une goutte initialement sphérique, de rayon R, soumise à un écoulement d'élongation linéaire et axisymétrique donné par $\mathbf{u}^{\infty}(\mathbf{r}) = \dot{\boldsymbol{\gamma}}.\mathbf{r}$ avec, en coordonnées cylindriques :

$$\dot{\boldsymbol{\gamma}} = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} -1/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{2.1}$$

Les coordonnées cylindriques que nous avons utilisées sont (r,Φ,z), et l'élongation que nous avons appliquée est orientée suivant z. Les conditions aux limites au niveau de l'interface seront les mêmes que celle que nous avons déjà introduites dans le chapitre consacré au champ de phase, avec une contribution spécifique $\boldsymbol{\sigma}_p$ liée à la présence de polymères à l'intérieur de la goutte :

$$\left[(2\eta_s \mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}_p) - 2\eta_{ext}\mathbf{D}\right].\mathbf{n} = \Sigma c \mathbf{n}. \tag{2.2}$$

η_s est la viscosité du solvant newtonien (voir chapitre précédent) et c est la courbure locale de l'interface. Σ est la tension de surface. Nous noterons $\eta_{int} = \eta_s + \eta_p$. Comme nous l'avons déjà mentionné, $\boldsymbol{\sigma}_p$ sera déterminé par une équation de type OLDROYD B (1.15).

2.1.1 Mise en équation

En terme de champ de phase, les équations dynamiques que nous allons devoir résoudre sont donc les suivantes :

$$\begin{cases} \epsilon_v \partial_t \mathbf{v} = \nabla.\left(\eta_s\left(1-\theta\right)\mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}_p + \eta_{ext}\left(1+\theta\right)\mathbf{D}\right) - \nabla P - \Sigma c\left(\theta\right)\nabla\theta \\ \nabla.\mathbf{v} = 0 \\ \tau_p \dfrac{1-\theta}{2} \overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = \eta_p\left(1-\theta\right)\mathbf{D} \\ \partial_t \theta = -\mathbf{v}.\nabla\theta + \Gamma^{-1}\left[\theta\left(1-\theta^2\right) + \epsilon^2\left(\Delta\theta - 2c\left(\theta\right)\left|\nabla\theta\right|\right)\right] \end{cases} \tag{2.3}$$

L'équation d'OLDROYD B est résolue dans tout le domaine, dans l'esprit de la méthode du champ de phase. Les effets viscoélastiques sont confinés à l'intérieur de la goutte grâce au facteur $(1-\theta)$. Comme condition initiale pour les contraintes $\boldsymbol{\sigma}_p$, nous avons pris $\boldsymbol{\sigma}_p(t=0) = \mathbf{0}$. Physiquement en effet, quelle que soit la préparation du système, les contraintes viscoélastiques vont finir par relaxer, au-delà du temps caractéristique τ_p. La condition initiale n'influe donc pas sur l'état **stationnaire**. Enfin, il faut signaler que nous avons dû utiliser une équation non conservative pour le champ de phase, ce qui va limiter nos

études à des phénomènes aux temps relativement courts pour éviter les dérives évoquées dans le premier chapitre.

2.1.2 Les paramètres du modèle

Par souci de cohérence avec les calculs que nous allons présenter dans le chapitre suivant, nous avons choisi le temps capillaire $\tau_{cap} = \eta_{ext} R/\Sigma$ comme échelle de temps pour adimensionner les équations. En effet, en l'absence de forçage extérieur et de viscoélasticité, c'est le seul temps caractéristique qui subsiste (avec le temps de relaxation des polymères naturellement). Il est alors facile de montrer que l'on obtient :

$$\begin{cases} Re\ \partial_t \mathbf{v} = \nabla.\left(\lambda_s\left(1-\theta\right)\mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}_p + \left(1+\theta\right)\mathbf{D}\right) - \nabla P - c\left(\theta\right)\nabla\theta \\ \nabla.\mathbf{v} = 0 \\ De\ \dfrac{1-\theta}{2}\overset{\nabla}{\boldsymbol{\sigma}}_p + \boldsymbol{\sigma}_p = \lambda_p\left(1-\theta\right)\mathbf{D} \\ \partial_t\theta = -\mathbf{v}.\nabla\theta + \Gamma^{-1}\left[\theta\left(1-\theta^2\right) + \epsilon^2\left(\Delta\theta - 2c\left(\theta\right)\left|\nabla\theta\right|\right)\right] \end{cases} \tag{2.4}$$

Mises sous cette forme, les équations font apparaître cinq paramètres sans dimension, que nous avons regroupés dans le tableau 2.1.

Paramètre	Nom	Définition	Valeur typique
Re	Nombre de Reynolds	$\epsilon_v R^2\dot{\gamma}/\eta_{ext}$	10^{-2}
Ca	Nombre capillaire	$\eta_{ext} R\dot{\gamma}/\Sigma$	0 à 0,12
De	Nombre de Deborah	$\tau_p\Sigma/\eta_{ext}R$	0 à 10
λ_p	Rapport de viscosités (polymères)	η_p/η_{ext}	0,5
λ_s	Rapport de viscosités (solvant)	η_s/η_{ext}	0,5

Tab. 2.1 – *Paramètres sans dimension intervenant dans l'étude des gouttes viscoélastiques en élongation.*

Classiquement, le nombre de Reynolds compare les effets visqueux aux effets inertiels. Le nombre capillaire quant à lui quantifie la résistance de la goutte à la contrainte appliquée par l'écoulement extérieur. Un faible nombre capillaire correspond ainsi à une goutte très peu déformable. Le nombre de Deborah, déjà introduit dans le chapitre précédent, est une mesure de l'importance des effets élastiques dans le système. Le nombre de Weissenberg s'obtient alors facilement par : $Wi = \tau_p\dot{\gamma} = CaDe$. Enfin, les rapports de viscosité entre le liquide extérieur et le solvant d'une part, et entre le liquide

extérieur et les polymères d'autre part, ont été fixés chacun à 0,5. Ainsi, le rapport de viscosités global entre l'intérieur de la goutte et l'extérieur ($\lambda = \lambda_s + \lambda_p$) sera toujours égal à 1. Nous savons malgré tout que ce paramètre joue un rôle très important dans les mécanismes de déformation des gouttes (voir par exemple [127] ou [160]), mais il nous a semblé préférable dans le cadre d'une étude préliminaire de réduire la dimension de l'espace des paramètres, afin de simplifier la discussion des résultats. Signalons toutefois que la méthode du champ de phase est tout-à-fait en mesure de fournir des résultats quantitatifs pour des systèmes avec contraste de viscosités (voir le chapitre 1 de la partie consacrée aux vésicules et [12, 19, 61] par exemple).

Les valeurs que nous avons utilisées sont justifiées par une rapide estimation des ordres de grandeur pour les liquides usuels (voir [150] par exemple). Pour une goutte de 100 μm de rayon et de densité $\rho \sim 10^3\ kg.m^{-3}$, placée dans un liquide de viscosité $\eta_{ext} \sim 1\ Pa.s$ (comme le glycérol par exemple), le nombre de REYNOLDS est de l'ordre de 10^{-5} pour un taux d'élongation appliqué de l'ordre du Hz. Les effets inertiels seront donc raisonnablement négligés, et l'approximation de STOKES utilisée. Avec une tension de surface typique de l'ordre de $10^{-3}\ N.m^{-1}$, on obtient $Ca \sim 0{,}1$. Dès lors, pour un temps de relaxation $\tau_p \sim 1\ s$, le nombre de DEBORAH sera proche de 10.

2.2 Le cas newtonien

La déformation de gouttes newtoniennes a été très largement étudiée depuis les premiers travaux, analytiques et expérimentaux, de TAYLOR [162, 163]. Nous voulons ici rappeler certains des résultats les plus importants afin de donner un aperçu de la grande richesse de ce système. Nous renvoyons toutefois le lecteur intéressé aux revues plus exhaustives de RALLISON [127] et STONE [160].

2.2.1 Approches expérimentales

Le dispositif expérimental classiquement utilisé depuis TAYLOR, et raffiné depuis notamment par BENTLEY & LEAL [16] est conceptuellement très simple. Une goutte (de quelques μm ou dizaines de μm de rayon) est placée au centre d'un dispositif formé de quatre rouleaux cylindriques en rotation (voir figure 2.1).

Un choix judicieux des sens de rotation des cylindres permet de produire un grand nombre de type d'écoulements, caractérisés par un taux de déformation de la forme (au voisinage du centre) :

$$\dot{\gamma} = \begin{pmatrix} 1+\alpha & 1-\alpha & 0 \\ -1+\alpha & -1-\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{2.5}$$

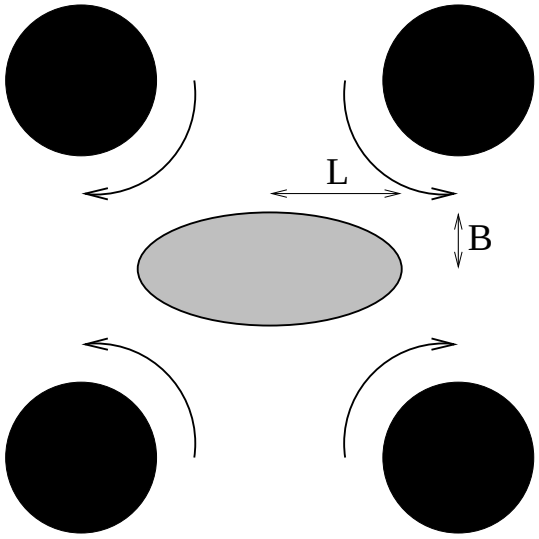


FIG. 2.1 – *Schéma du dispositif expérimental de* TAYLOR *(quatre rouleaux). Le point de stagnation est instable, et un ajustement fin des vitesses de rotation relatives des 4 rouleaux est nécessaire pour maintenir la goutte au centre [16].*

avec α un paramètre variable qui détermine le type de l'écoulement. Il varie typiquement entre 0 (cisaillement simple) et 1 (élongation). Les écoulements produits par ce dispositif sont essentiellement bidimensionnels (les rouleaux imposent une invariance de la contrainte appliquée dans la direction verticale).

La principale difficulté de ce type d'expérience est liée au caractère très instable du point de stagnation sur lequel se trouve initialement la goutte. Dans la référence [16], un contrôle direct assisté numériquement est utilisé et a permis une étude très complète de la déformation et de la rupture des gouttes newtoniennes en fonction des paramètres pertinents (ici, le nombre capillaire et le rapport de viscosités).

Nous pouvons également évoquer certaines approches expérimentales, basées sur un dispositif de plaques parallèles séparées par une épaisseur de l'ordre du mm, pour des gouttes de quelques dizaines de μm [67]. Ce type de dispositif est naturellement limité aux écoulements de cisaillement pur.

Elongation

En élongation, BENTLEY & LEAL ont fait varier le rapport de viscosités λ sur plusieurs ordres de grandeur (de 10^{-3} à 10^{2}).

Aux **faibles nombres capillaires**, la forme des gouttes est essentiellement elliptique, quelle que soit la valeur du rapport de viscosités. Quand la contrainte appliquée augmente, deux comportements très différents peuvent être observés.

Aux **faibles rapports de viscosité** (typiquement 10^{-3}), les gouttes les plus déformées présentent une forme en fuseau très caractéristique. Par ailleurs,

pour des valeurs de λ inférieures à 0,1, une série de gouttelettes d'une cinquantaine de μm de rayon sont éjectées de la goutte au niveau des extrémités. Un tel phénomène (appelé en anglais "tip streaming", voir figure 2.2) avait été observé par TAYLOR lui-même en 1934 [163], puis par GRACE [66] et DE BRUIJN [41] notamment.

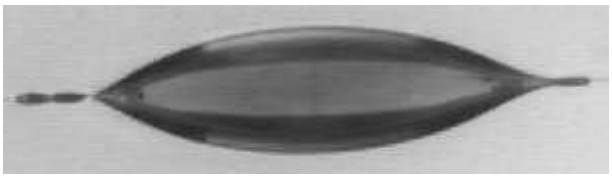


FIG. 2.2 – *"Tip streaming" (d'après Michael* DREYER*, université de Brême (http://www.zarm.uni-bremen.de).*

A partir des expériences de DE BRUIJN, il est possible de conclure que cet effet est dû à l'existence de gradients de concentration en surfactants au niveau de l'interface [41, 160] : l'écoulement imposé provoque une accumulation de ces molécules (utilisées pour modifier la tension de surface) au niveau de l'extrémité de la goutte, résultant en une diminution souvent sensible de la tension de surface locale[1]. Cet effet est en partie compensé par la dilution des surfactants liée à l'élongation de la goutte, mais on peut dire schématiquement que cette dernière est "fragilisée" à ses extrémités, et l'éjection de gouttelettes favorisée. Cette compétition au niveau de l'interface a bien été décrite dans la référence [77], dans laquelle les auteurs ont mis en évidence l'importance spécifique des tensioactifs (en l'occurence des copolymères diblocs) sur la déformation. Ce processus cesse quand la majorité du surfactant a disparu de l'interface, et reprend généralement s'il est remis en solution.

Aux **forts rapports de viscosité** au contraire, la goutte reste essentiellement elliptique [67].

Effet de la vorticité

L'introduction d'une composante rotationnelle dans l'écoulement imposé complique sensiblement les résultats, comme nous le verrons d'ailleurs dans le chapitre 1 de la partie III, consacrée aux vésicules sous cisaillement. Très schématiquement, la goutte sera d'autant plus sensible à la composante rotationnelle que le rapport de viscosités sera élevé.

L'article de BENTLEY & LEAL contient ainsi une importante étude de la déformation de gouttes sous cisaillement [16]. Il est notamment clairement établi que la vorticité tend à inhiber la rupture pour des valeurs de

1. Il est en effet possible de mesurer la tension de surface des gouttelettes émises au niveau des pointes par une étude *a posteriori* en faible déformation. La tension de surface ainsi mesurée est souvent beaucoup plus faible que celle de la goutte d'origine [160].

α inférieures à 0,4. Plus précisément, aux forts rapports de viscosités, typiquement supérieurs à 3,5, un état stationnaire est **toujours** atteint, quelle que soit la valeur du nombre capillaire : la composante rotationnelle de l'écoulement tend systématiquement à écarter la goutte de l'axe principal d'élongation. Dans ce cas, la forme stationnaire est essentiellement ellipsoïdale, et l'angle d'inclinaison avec la direction du cisaillement est proche de 0 [127].

Aux faibles rapports de viscosités, la goutte développe une forme sigmoïdale caractéristique, et le phénomène de "tip streaming" peut être observé [38, 41].

Enfin, signalons que les régimes transitoires sont eux aussi très riches, en particulier dans le cas d'un cisaillement appliqué brutalement à une goutte initialement sphérique. Dans ce cas en effet, cette dernière s'allonge et s'oriente à un angle qui dépend du rapport de viscosités. Toutefois, cet angle d'équilibre n'est atteint qu'après une série d'oscillations amorties par la tension de surface [127].

2.2.2 Approches analytiques et numériques

Le faible nombre de paramètres pertinents rend relativement abordable le problème de la déformation de gouttes newtoniennes, dans des écoulements linéaires.

Approches analytiques

Les premières approches de ce type sont dues à TAYLOR, qui dès les années 30 a pu déterminer l'allongement de gouttes en fonction du nombre capillaire, pour des rapports de viscosité variables [162, 163]. Depuis, les méthodes ont certes évolué, mais ces calculs gardent une valeur de référence[2].

Les **théories de faible déformation** sont basées sur les solutions des équations de STOKES en géométrie sphérique, déterminées initialement par LAMB [90]. Le calcul est basé sur un développement perturbatif autour de la sphère, en termes d'harmoniques sphériques. Au premier ordre, dans le cas d'écoulements planaires, tels que ceux décrits par (2.5), le mode de déformation est elliptique, et une relation linéaire entre la déformation et le nombre capillaire peut être extraite. Dans le cas d'une élongation pure (α=1), on obtient ainsi :

$$D = \frac{19\lambda + 16}{16\lambda + 16} Ca \, (e_{max} - e_{min}) \tag{2.6}$$

avec $D = (L-B)/(L+B)$ (voir figure 2.1) un paramètre qui caractérise la déformation de la goutte. Dans (2.6), e_{max} et e_{min} représentent le plus grand et le plus petit taux d'élongation principal [127]. Les confrontations directes

2. Sans doute parce qu'ils étaient combinés à une approche expérimentale qui elle aussi fait référence depuis...

avec les résultats expérimentaux sont excellents, y compris pour des valeurs relativement importantes de déformation ($D \sim$0,15).

A l'ordre supérieur, les calculs deviennent rapidement plus complexes. Les résultats de BARTHÈS-BIESEL & ACRIVOS donnent une relation pour D à l'ordre 2 en nombre capillaire, pour différents types d'écoulements [7]. Le résultat final, dans le cas d'un écoulement d'élongation axisymétrique, donne :

$$D = \frac{1}{2}\left|\frac{Ca\left[-\frac{9}{2}A - \frac{399}{4b_0}CaA\left(-b_1 + b_2 A\right)\right]}{1 - \frac{3}{4}Ca\left(A + \frac{24}{10}CaA^2\right) - \frac{891}{8b_0}Ca^2 A\left(-b_1 + b_2 A\right)}\right| \tag{2.7}$$

avec A une racine d'un polynôme d'ordre 3, et b_i des fractions rationnelles. Ce calcul, bien que perturbatif, reste très quantitatif, même aux fortes déformations [160]. Au-delà d'un certain seuil, les solutions obtenues deviennent instables, ce qui peut être mis en relation avec la perte de stabilité que nous étudierons dans le prochain chapitre.

Dans le cas de **grandes déformations**, la goutte est très allongée et fine. De simples considérations algébriques (conservation de la masse et équilibre des contraintes sur l'interface) permettent de déterminer l'épaisseur de la goutte en fonction du nombre capillaire [160], et on trouve alors une relation en Ca^{-3}. Aux très faibles rapports de viscosités, des modèles dits de "corps allongés" ("slender body theory") donnent des résultats qualitatifs (à 20 %) pour la déformation [74, 160].

Des modèles plus complexes consistent à modéliser la présence de la goutte par une série de termes sources (pour le fluide et les forces) le long d'une ligne "centrale". Les équations hydrodynamiques sont alors résolues en terme de la fonction de courant, et la position de l'interface correspond à l'isocontour 0 de cette fonction [21, 121, 127]. La difficulté consiste naturellement à choisir correctement le nombre et la force des termes singuliers, ainsi que la nature de la ligne centrale. Toutefois, cette méthode permet d'obtenir les formes en fuseau décrites dans le paragraphe précédent, dans la limite de faibles contrastes de viscosité [21].

Enfin, il faut signaler certaines approches basées sur l'emploi de fonctions analytiques, qui restent par conséquent limitées aux cas bidimensionnels [22]. Ce type d'approche est plus simple dans le cas $\lambda = 1$ [127], et montre que plusieurs formes stationnaires peuvent exister pour un nombre capillaire donné[3].

Dans les **régimes intermédiaires**, il faut signaler l'approche phénoménologique de MAFFETONE & MINALE [98], valable si la forme de la goutte reste elliptique. Cette hypothèse est en général bien vérifiée, comme nous l'avons déjà mentionné plus haut [67]. La déformation de la goutte est alors donnée par :

3. Même si selon toute vraisemblance une seule est réellement stable.

$$D = \frac{2f_1 - f_2 Ca - 2\sqrt{(f_1 + f_2 Ca)(f_1 - 2f_2 Ca)}}{3f_2 Ca} \tag{2.8}$$

avec f_1 et f_2 deux fractions rationnelles qui dépendent du rapport de viscosités. f_2 peut être modifiée et dépendre d'une façon complexe du nombre capillaire. Deux exposants sont alors introduits dans la définition de f_2, ce qui confère une certaine souplesse au modèle.

Approches numériques

La plupart des approches numériques sur ce type de problème sont basées sur la technique des intégrales de frontières [121], c'est-à-dire sur un suivi implicite de l'interface (voir chapitre 1, partie I). Cette méthode a ainsi été utilisée, en l'absence de contraste de viscosités, dans différentes situations (cisaillement et élongation avec vorticité variable) [126]. Les formes en pointes ont pu récemment être reproduites numériquement par une méthode similaire, qui incluait les effets liés à la diffusion de surfactants [122].

Enfin, une technique d'intégrales de frontières avec maillage adaptatif sur l'interface a pu être mise en œuvre pour le problème des gouttes sous cisaillement qui présentent des amincissements localisés très marqués, et difficiles à modéliser [37, 38]. La confrontation avec les résulats expérimentaux est remarquable. Une autre approche, basée cette fois sur une méthode "Volume-Of-Fluid", donne des résultats tout aussi impressionnants [96].

2.2.3 Confrontation directe avec les modèles analytiques

Notre schéma numérique permet *a priori* de traiter le cas newtonien, il suffit pour cela de fixer $De = 0$. La contrainte supplémentaire que nous nous sommes imposée consiste à poser $\lambda = 1$. Parmi tous les choix possibles, nous avons essayé $\lambda_p = 0$ et $\lambda_s = 1$, ou $\lambda_p = \lambda_s = 0{,}5$. Dans le premier cas, la contribution visqueuse est traîtée de façon totalement implicite. Le temps de calcul est considérablement réduit, puisque les contraintes $\boldsymbol{\sigma}_p$ n'ont plus à être calculées, ce qui ramène le nombre d'inconnues de 8 à 4. L'autre prescription doit toutefois être testée également puisque nous n'aurons pas d'autre possibilité dans le cas viscoélastique complet[4]. Les résultats sont regroupés sur le graphe 2.3.

Les résultats analytiques de TAYLOR (2.6) et BARTHES-BIESEL & ACRIVOS (2.7) sont également représentés sur ce graphe. La comparaison avec les prédictions de TAYLOR est délicate, puisque nous nous plaçons dans une géométrie axisymétrique, alors que le calcul a été effectué en situation bidimensionnelle (en vue d'une confrontation directe avec les mesures en 4 rouleaux).

4. Il s'agit en fait d'un test de validité pour le calcul des composantes de $\boldsymbol{\sigma}_p$.

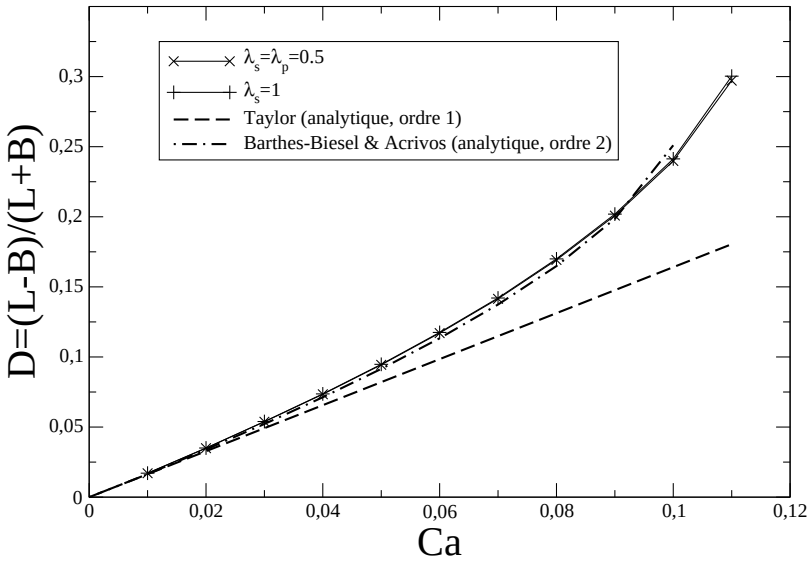


FIG. 2.3 – *Elongation de la goutte en fonction du capillaire. Le rapport de viscosités* **total** *a été fixé à 1, et une confrontation directe avec les prédictions de* TAYLOR *(2.6) ($e_{max} = 1.0$ et $e_{min} = -0.5$) et* BARTHES-BIESEL *&* ACRIVOS *(2.7) est proposée. La cohérence de la méthode est validée par les 2 premières courbes ($\lambda_s = \lambda_p = 0.5$ et $\lambda_s = 1$) qui donnent sensiblement le même résultat, malgré une méthode de résolution légérement différente.*

Toutefois, comme nous l'avons déjà signalé, l'écoulement au voisinage de la goutte est essentiellement axisymétrique.

Il apparaît clairement sur ce graphe que notre approche est tout-à-fait quantitative (les courbes analytiques ne contiennent aucun paramètre ajustable!). Un point frappant est que les prédictions analytiques (en particulier à l'ordre 2), pourtant effectuées dans le cadre d'un calcul perturbatif, restent particulièrement précises à des déformations pourtant non négligeables ($D \sim 0{,}3$). Il faut signaler malgré tout que le modèle d'ordre 2 prévoit l'existence d'états stationnaires jusqu'à des capillaires de 0,104, alors que nous avons pu obtenir de telles solutions jusqu'à $Ca \sim 0{,}116$ (voir chapitre suivant). Nous avons également essayé de comparer nos prédictions au cas le plus simple proposé par MAFFETONE & MINALE [98], mais la déformation est alors manifestement sous-estimée par le calcul analytique. Il serait possible d'améliorer la comparaison en déterminant par voie de régression les exposants phénoménologiques du modèle, mais il nous a semblé que la confrontation perdait alors son intérêt.

Il est également important de vérifier que le volume des gouttes reste

constant au cours de la dynamique. En effet, toute variation de volume se traduirait par une variation du nombre capillaire, et donc de la déformabilité de la goutte. Nous montrons sur la figure 2.4 que le volume des gouttes ne varie pas plus de 2 %, ce qui est tout-à-fait raisonnable. Ces pertes sont essentiellement dues aux erreurs commises sur le calcul du terme advectif du champ de phase, que nous avons réduites en utilisant systématiquement les transformées de FOURIER pour calculer les opérateurs différentiels.

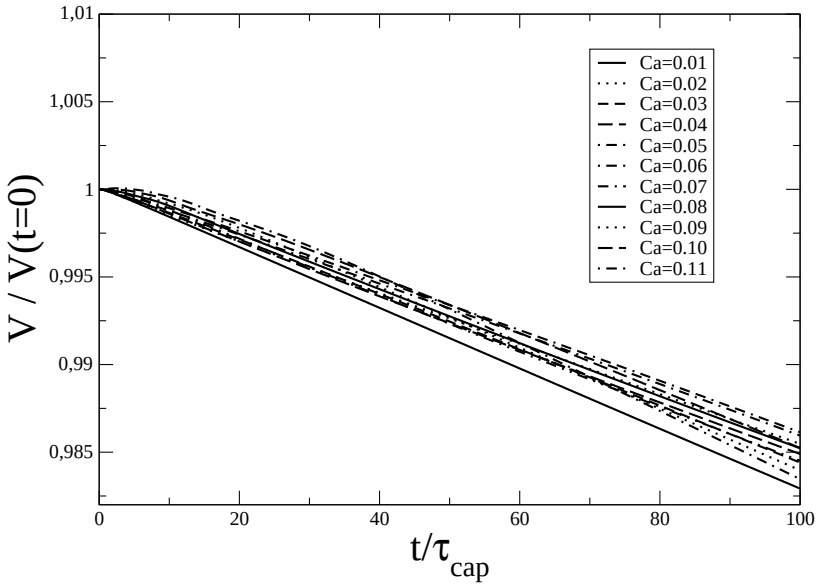


FIG. 2.4 – *Volume normalisé (par le volume initial) des gouttes newtoniennes en élongation. Les pertes de volume, régulières, sont limitées à moins de 2 %.*

Enfin, nous avons porté sur la figure 2.5 les profils obtenus pour les gouttes dans l'état stationnaire, en fonction du nombre capillaire. Les morphologies restent essentiellement ellipsoïdales, comme cela peut être observé expérimentalement [160].

2.3 Introduction des effets viscoélastiques

Les effets viscoélastiques peuvent intervenir à deux niveaux, à l'intérieur ou à l'extérieur de la goutte. Nous allons nous limiter au premier cas[5], en sachant

5. Essentiellement pour des questions d'algorithmique. Nous utilisons en effet des conditions aux limites périodiques pour limiter les effets de taille finie, et il est beaucoup plus simple dans ce contexte de confiner les effets viscoélastiques à l'intérieur de la goutte.

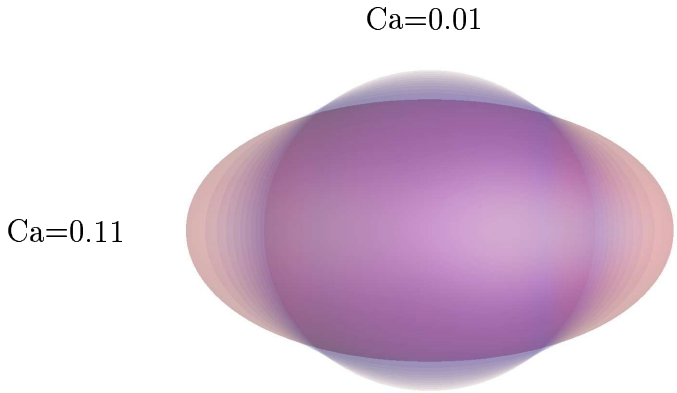


FIG. 2.5 – *Profil des gouttes newtoniennes en élongation. La forme reste essentiellement ellipsoïdale.*

que le second a été très étudié, aussi bien d'un point de vue expérimental [43, 166] que numérique [43, 75, 76, 130] ou analytique [43, 99].

Quelle que soit l'approche envisagée, il faut remarquer que les études dans le cas non newtonien sont difficiles, ne serait-ce que pour déterminer les paramètres pertinents [99]. En conséquence, les résultats sont souvent dispersés, et un schéma unique englobant les différents résultats accessibles manque encore. Le cas d'une goutte viscoélastique soumise à une élongation dans un liquide newtonien a été étudié expérimentalement par MILLIKEN & LEAL avec un montage de type "4 rouleaux" semblable à celui utilisé dans le cas newtonien [104]. Comme souligné par les auteurs eux-même, la tension de surface de ces liquides polymériques est difficile à mesurer par les méthodes usuelles, très efficaces dans le cas newtonien. Il est toutefois possible d'utiliser les résultats analytiques de TAYLOR pour les faibles déformations de gouttes newtoniennes pour estimer ce paramètre, au moins pour les faibles nombres de DEBORAH. Aux **faibles rapports de viscosités** (inférieurs à 1), les gouttes viscoélastiques sont davantage déformées que les gouttes newtoniennes, pour un nombre capillaire identique. Aux bas nombres capillaires cependant, les deux régimes sont indiscernables. Enfin, le phénomène de "tip streaming" est observé dans cette situation. La présence de polymères au niveau de l'interface est certainement responsable de ce phénomène, ainsi que nous l'avons déjà mentionné précédemment. De façon surprenante, ce phénomène n'apparaît pas toujours de façon symétrique dans ces expériences : parfois, une seule des deux extrémités est concernée. Le type de déformation observée semble par contre indépendant de la nature précise du liquide (viscoélastique, purement élastique, ...) [104, 129].

Une approche totalement différente a été envisagée dans [155, 156]. Les auteurs ont ainsi étudié la morphologie de gouttes de polymères (xanthane)

en sédimentation dans un liquide visqueux. Dans la limite quasi newtonienne, la forme de la goutte reste sphérique, en accord avec les résultats analytiques de LAMB [90], mais quand la viscoélasticité augmente, un creusement apparaît à l'arrière de la goutte, qui finit par se déstabiliser par le biais de l'instabilité de RAYLEIGH. Finalement, quand la vitesse de sédimentation devient très importante, la goutte finit par dégénérer en tore (voir figure 2.10). Cette étude est complétée par un calcul perturbatif à l'ordre 3, basé sur une équation du type (1.43). La rhéofluidité du liquide, qui apparaît au troisième ordre de perturbation, semble jouer un rôle essentiel dans cette dynamique.

D'un point de vue numérique, les difficultés sont elles aussi très importantes, du fait même des non linéarités introduites par la présence de polymères. La méthode des intégrales de frontières n'est alors plus utilisable, et plusieurs méthodes ont été développées, notamment basées sur la méthode des éléments finis (FEM). Cette méthode doit être modifiée pour éviter les difficultés aux grands nombres de WEISSENBERG, et une méthode couramment utilisée consiste à séparer les contributions visqueuses et élastiques dans le shéma d'interpolation (on parle alors de schéma DEVSS-G FEM : "Discrete Elastic Visous Stress-Splitting" [75, 76]). La méthode des éléments de frontière (BEM) est plus particulièrement adaptée au cas qui nous intéresse ici, à savoir une goutte viscoélastique dans une matrice newtonienne [76, 165]. Les simulations effectuées avec un modèle d'OLDROYD B, sans contraste de viscosités, montrent que les gouttes viscoélastiques résistent davantage à l'élongation que les gouttes newtoniennes. La méthode des éléments de frontière est suffisamment performante pour traiter le cas de particules complétement élastiques [165], et dans ce cas, les confrontations avec les modèles analytiques [136] se sont révélées très encourageantes. Toutes ces simulations sont effectuées dans une géométrie axisymétrique.

Une autre approche numérique est proposée par RAMASWAMY & LEAL [129]. Le système consiste une fois de plus en une goutte polymérique soumise à un écoulement d'élongation axisymétrique, mais cette fois, la rhéologie de phases viscoélastiques est décrite par un modèle de type FENE (1.47). Le schéma numérique utilisé est basé sur une transformation conforme du domaine de résolution physique ("orthogonal mapping"). Les auteurs se sont surtout intéressés à la localisation des contraintes viscoélastiques au niveau des extrémités de la goutte. Un paramètre important du modèle est la concentration en polymères. Les études dont il est question ici sont limitées à des situations très diluées.

Une dernière classe d'approche numérique repose sur la méthode de "level set", et a permis la modélisation de gouttes viscoélastiques en cisaillement dans un liquide simple, et inversement [118]. Les calculs, essentiellement qualitatifs, utilisaient la méthode des éléments finis à 3 dimensions.

Enfin, un modèle phénoménologique simple a été proposé récemment par MAFFETONE & GRECO [99]. Le principe est le même que dans le cas newto-

nien, traité par MAFFETONE & MINALE [98], et suppose *a priori* une forme elliptique pour la goutte. La rhéologie de la phase viscoélastique est décrite par un modèle du second ordre (voir équation (1.43), page 53), et différentes situations sont envisagées, notamment en cisaillement. Les prédictions du modèle sont en bon accord avec les résultats expérimentaux.

2.3.1 Déformation à rapport de viscosités constant

Notre approche nous a permis d'envisager des situations dans lesquelles la goutte était très déformée, jusqu'à la perte de stabilité que nous étudierons plus spécifiquement dans le prochain paragraphe. Comme nous l'avons déjà mentionné, aucun contraste de viscosités ne sera imposé entre l'intérieur de la goutte et l'extérieur ($\lambda_s = \lambda_p = 0{,}5 \Rightarrow \lambda = 1$).

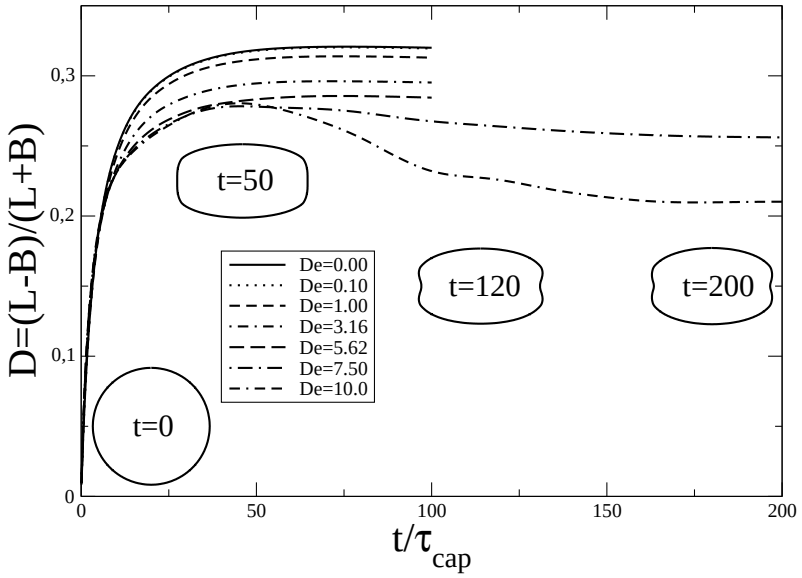


FIG. 2.6 – *Elongation d'une goutte de polymères ($\lambda = 1$, $Ca = 0{,}1125$) en fonction du temps. Les inserts correspondent aux profils de la goutte pour De=10, à t=0, 50, 120 et 200 (en unités τ_{cap}).*

Dans un premier temps donc, nous avons progressiment augmenté le nombre de DEBORAH, de 0 (newtonien) à 10. Cette valeur est la plus grande que nous ayons pu obtenir numériquement. Pour les plus grands capillaires que nous ayons utilisés (typiquement $Ca \sim 0{,}1$), ceci correspond à des nombres de WEISSENBERG de l'ordre de l'unité. A ce niveau, on s'attend à ce que les effets viscoélastiques jouent un rôle important [128].

Les résultats sont présentés sur la figure 2.6, pour un capillaire de 0,1125. Cette dernière valeur correspond au plus grand capillaire que nous ayons pu utiliser pour obtenir des états stationnaires. Au-delà de cette valeur, la forme de la goutte dépend du temps, comme nous y reviendrons par la suite. Néanmoins, trois remarques importantes peuvent être d'ores-et-déjà déduites de ce graphe. Tout d'abord, les gouttes viscoélastiques sont moins déformées que leurs homologues newtoniennes. Certaines mesures expérimentales donnent un résultat opposé, mais sont limitées aux faibles rapport de viscosités [104]. Par contre, cet effet avait déjà été observé numériquement [76].

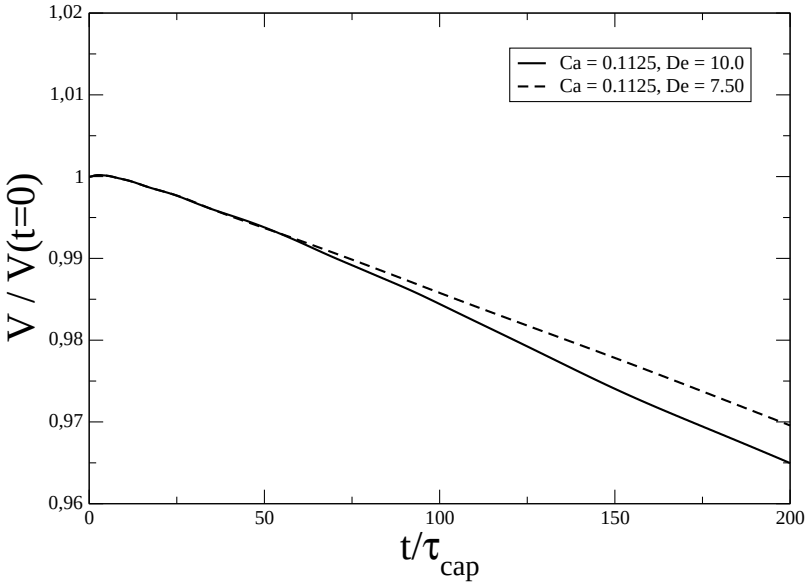


FIG. 2.7 – *Volume normalisé (par le volume initial) des gouttes (De=7,50 et 10) en élongation, avec Ca=0,1125. Les pertes de volume, régulières, sont limitées à moins de 2 %, et sont essentiellement causées par les imprécisions de calcul sur le terme d'advection du champ de phase.*

Par ailleurs, le temps nécessaire à la goutte pour atteindre un état stationnaire est beaucoup plus important dans le cas viscoélastique (en particulier quand De devient supérieur à 5). Ces temps longs constituent d'ailleurs le principal facteur limitatif de nos simulations : notre algorithme continue à fournir des résultats pour des De plus grands que 10, mais alors les dérives du champ de phase ne sont plus du tout négligeables, le volume de la goutte varie beaucoup, et les résultats deviennent inexploitables (dans le régime viscoélastique, les pertes de volume restent limitées à 3 % pour les calculs les plus longs que nous ayons utilisé, comme nous le voyons sur la courbe 2.7, où nous avons

représenté le volume des gouttes correspondant à un DEBORAH de 7,50 et 10, avec un capillaire de 0,1125). Un maximum très marqué, lui aussi observé avec d'autres méthodes [75], apparaît par ailleurs pour les viscoélasticités les plus élevées, et correspond à un stokage d'énergie élastique dans la goutte.

Enfin, nous avons représenté en insert les profils obtenus pour les gouttes viscoélastiques, et une différence essentielle avec le cas purement newtonien apparaît ici, puisque les deux extrémités de la goutte semblent se creuser, en opposition à l'écoulement d'élongation imposé. Nous reviendrons sur ce résultat *a priori* surprenant dans le prochain paragraphe.

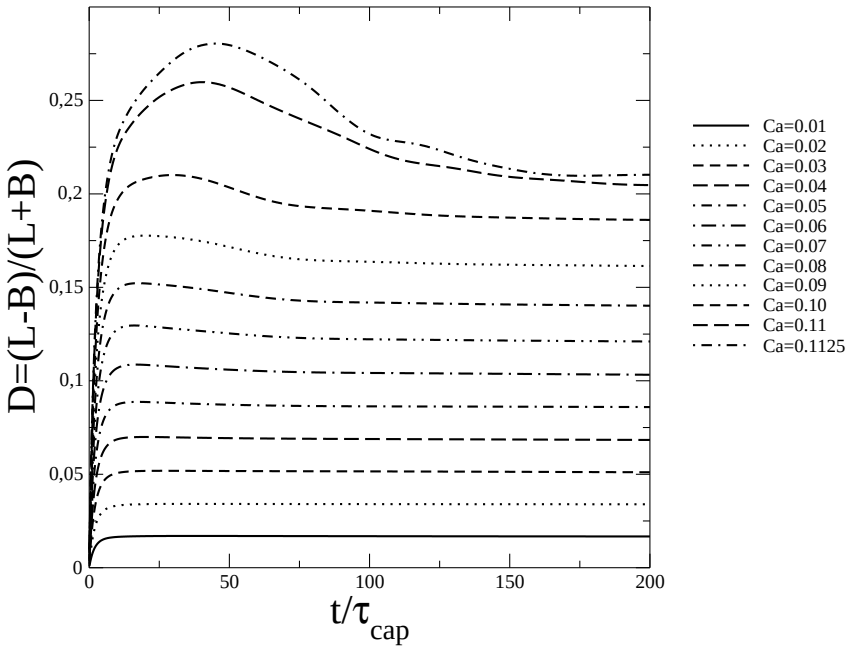


FIG. 2.8 – *Elongation d'une goutte de polymères ($\lambda = 1$, $De = 10$) en fonction du temps.*

Sur la figure 2.8, nous voyons l'évolution de la déformation de la goutte en fonction du temps, pour un DEBORAH de 10. Le maximum est toujours très visible et apparaît pour des déformations D de l'ordre de 0,05. De façon très intuitive, la déformation augmente avec le capillaire, et nous avons porté sur la figure 2.9 les valeurs de D pour différents capillaires et nombres de DEBORAH.

La goutte est de moins en moins déformée à mesure que la viscoélasticité augmente, mais l'allure de la courbe n'est pas sensiblement modifiée par ce paramètre.

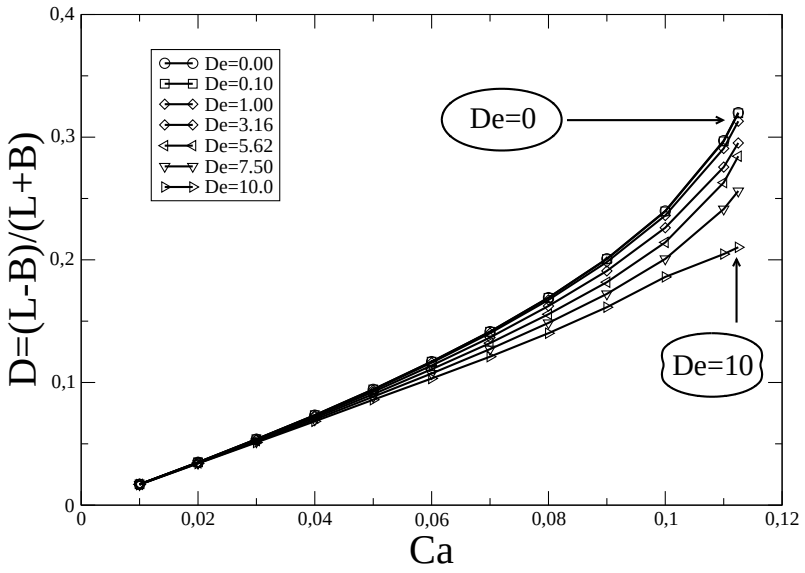


FIG. 2.9 – *Influence de la viscoélasticité sur l'élongation de la goutte. Le nombre de* DEBORAH *a été varié entre 0 et 10, et les capillaires entre 0 et 0,1125. Les inserts correspondent aux profils de la goutte pour De=0 ou 10, et Ca=0,1125.*

2.3.2 Inversion de courbure le long de l'axe d'élongation

Comme nous l'avons déjà signalé, un examen des profils stationnaires aux grandes valeurs de Ca révèle l'apparition d'une inversion de courbure localisée sur l'extrémité de la goutte, nettement visible sur la figure 2.10 (en haut). A notre connaissance, ce retournement n'a jamais été observé dans un écoulement d'élongation.

Dans le cas de gouttes en sédimentation par contre, un tel phénomène a été bien décrit récemment par SOSTARECZ & BELMONTE [155, 156]. Dans leur cas, aucun écoulement n'est imposé sur la goutte, et le développement de ce "cusp" est particulièrement spectaculaire, puisqu'il peut traverser la goutte pour conduire à la formation d'un tore (voir figure 2.10). Ce dernier n'apparaît qu'aux fortes vitesses de sédimentation et pour des gouttes de grande taille (de l'ordre du millimètre), c'est-à-dire pour des capillaires assez élevés. Dans notre situation, cette situation ne peut pas intervenir, puisqu'au-delà d'une certaine valeur de Ca, les profils stationnaires disparaissent.

Nous avons cherché à quantifier davantage cette inversion en mesurant la courbure moyenne H sur l'axe d'élongation (figure 2.11). Aux faibles nombres

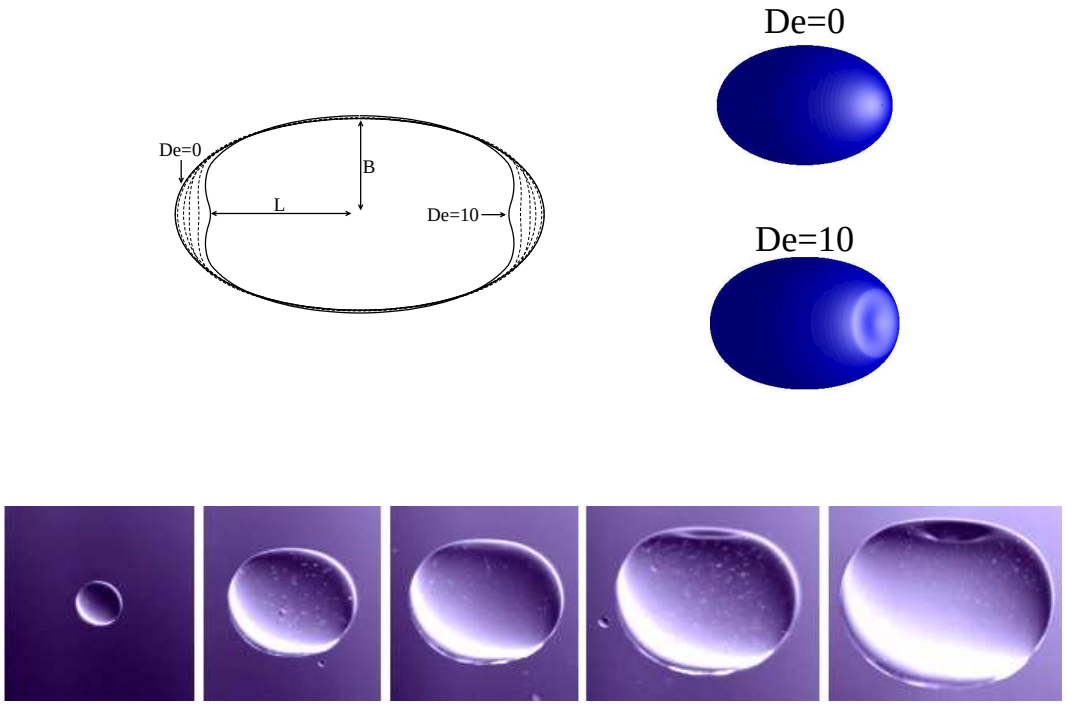


FIG. 2.10 – *En haut : profils des gouttes pour Ca=0,1125 et De variable entre 0 et 10. L'inversion de courbure est nettement visible à partir de De=7,5. En bas : gouttes viscoélastiques (xanthane) en sédimentation dans un liquide visqueux. Le volume de la goutte (et donc le nombre capillaire) augmente de gauche à droite : 0,01 ml, 0,12 ml, 0,21 ml, 0,35 ml et 0,52 ml (d'après [155]).*

capillaires, la courbure est proche de 1, qui est la valeur attendue pour une sphère. Pour des nombres de DEBORAH inférieurs à 5, H varie de façon monotone et croissante : la goutte s'allonge et devient de plus en plus elliptique. Pour des valeurs supérieures à 5 par contre, la courbure commence à décroître pour des capillaires supérieurs à 0,05, et devient franchement négative pour des valeurs de Ca de l'ordre de 0,1 et des nombres de DEBORAH supérieurs à 7,5. La courbe pour De=10 semble même diverger vers $-\infty$ pour les grands capillaires, ce qui semble indiquer l'apparition d'une singularité de courbure ("cusp"). Toutefois, la méthode numérique que nous utilisons ne permet pas de résoudre finement les petites échelles de longueur, comme nous l'avons déjà mentionné dans la partie consacrée au champ de phase, et nous ne serions donc pas en mesure d'observer un tel phénomène s'il devait avoir lieu.

Dans la référence [76], une goutte viscoélastique est placée dans un écoulement d'élongation, mais aucune inversion de courbure n'est observée. De façon qualitative, les auteurs mettent cependant en évidence une différence de morphologie entre les gouttes newtoniennes et viscoélastiques. Ces dernières

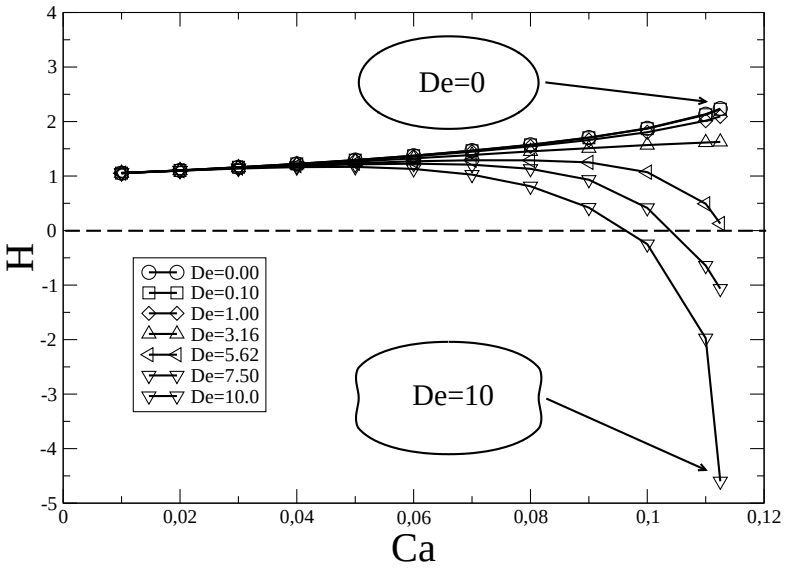


FIG. 2.11 – *Courbure moyenne de l'interface sur l'extrémité de la goutte, le long de l'axe d'élongation.*

apparaissent en général moins arrondies au niveau des extrémités. Les paramètres utilisés dans cette simulation correspondent dans notre cas à un capillaire de 0.1 et un nombre de DEBORAH de 10. D'après la courbe 2.11, la courbure locale est négative, mais très proche de 0. Les deux approches ne sont donc pas incompatibles et semblent aller dans le même sens.

Cet effet est très surprenant puisqu'en général ces singularités apparaissent en sens opposé, c'est-à-dire dans la direction de l'écoulement imposé [122, 160], et plutôt aux faibles rapports de viscosité. Nous allons voir maintenant que les contraintes viscoélastiques jouent un grand rôle dans l'apparition de ces structures.

2.3.3 Le rôle des contraintes viscoélastiques

Pour mieux percevoir l'importance de l'écoulement et des contraintes viscoélastiques à l'intérieur de la goutte sur l'apparition de ces inversions de courbure, différentes quantités peuvent être mesurées numériquement :

- les **lignes de courant**, définies comme les isocontours de la fonction Ψ, avec $\mathbf{v} = \nabla \times (\Psi \mathbf{n}_\Phi)$. Ici, $\mathbf{n}_\Phi$ est le vecteur normal orthoradial, perpendiculaire au plan (r,z) dans lequel nous travaillons.

- le **taux d'élongation local**. Nous utilisons une géométrie axisymétrique, et le tenseur de taux de déformation peut s'écrire :

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 2\partial_r v_r & 0 & \partial_r v_z + \partial_z v_r \\ 0 & 2v_r/r & 0 \\ \partial_r v_z + \partial_z v_r & 0 & 2\partial_z v_z \end{pmatrix}. \tag{2.9}$$

  Les valeurs propres de ce tenseurs représentent la déformation locale d'un élément de fluide[6]. Le taux d'élongation local peut alors être estimé par $\sqrt{Tr\,(\mathbf{D}.\mathbf{D}^T)}$ [23] : pour un écoulement purement élongationnel, cette quantité vaut $\sqrt{3/2}\dot{\gamma}$.
- les **contraintes viscoélastiques**, données par la trace de $\boldsymbol{\sigma}_p$. Cette quantité est directement reliée à l'élongation des chaînes de polymères par la relation (1.30), page 49.

Ces trois quantités sont représentées sur la figure 2.12, pour différentes valeurs du nombre de DEBORAH, et un nombre capillaire de 0,1125. Dans la colonne de gauche, nous avons représenté les lignes de courant. Nous avons vérifié que la ligne $\Psi = 0$ correspondait bien à l'isocontour $\theta = 0$ du champ de phase qui définit l'interface. Ceci confirme d'ailleurs que nous avons bien atteint un état stationnaire, et que l'inversion de courbure observée ne correspond pas à un régime transitoire. L'écoulement est essentiellement rotationnel. Dans le cas newtonien, les lignes de courant occupent tout le volume de la goutte, et se ressèrent au voisinage de l'interface quand la viscoélasticité augmente. Cet effet a lui aussi été observé dans la référence [76].

Les taux d'élongation les plus importants sont quant à eux localisés au voisinage de la pointe de la goutte dans le cas newtonien, et tendent à s'écarter de l'axe de symétrie quand la viscoélasticité augmente (colonne centrale). Dans le cas newtonien, il est normal que les taux d'élongation soient maximaux à l'extrémité de la goutte, puisque c'est précisément à cet endroit que les contraintes capillaires sont les plus importantes (la courbure locale est plus prononcée à cet endroit). Cet effet est encore amplifié par la géométrie axisymétrique qui impose un écoulement convergent vers l'axe de symétrie de la goutte.

Enfin, dans la colonne de droite, nous voyons que la contrainte viscoélastique est localisée au voisinage de la pointe de la goutte, et que cette localisation est d'autant plus importante que le nombre de DEBORAH augmente.

Ces observations nous permettent de conclure que la présence de polymères tend à écranter l'écoulement au centre de la goutte, comme cela a d'ailleurs été observé dans d'autres simulations [129], avec un modèle de FENE pour la viscoélasticité.

6. Nous avons d'ailleurs vérifié que la somme de ces trois valeurs propres est bien nulle, conformément à la prescription d'incompressibilité du fluide.

La deuxième conséquence est l'inversion de courbure localisée que nous évoquions dans le paragraphe précédent. En effet, si nous suivons un polymère le long d'une ligne de courant, il apparaît clairement sur la figure 2.12 que ce dernier est de plus en plus étiré quand il se rapproche de l'extrémité de la goutte (l'allongement des polymères est directement relié à la trace de $\boldsymbol{\sigma}_p$ par la relation (1.30), page 49).

Dans l'état stationnaire, l'interface est une ligne de courant. L'une des direction principales d'élongation sera donc parallèle à l'interface. Par conséquent, la deuxième direction propre sera orthogonale à l'interface. La visualisation directe de cet effet n'est pas très aisée dans notre cas du fait de la largeur artificielle de l'interface, mais il a déjà été mis en évidence dans la référence [129]. Le stockage d'énergie élastique ainsi effectué va donc avoir une répercussion directe dans le bilan énergétique au niveau de l'interface, ce qui se traduit par une diminution de la courbure locale. En effet, on peut estimer que la contrainte appliquée localement sur la goutte est d'ordre $\eta_{ext}\dot{\gamma}$. Dans le cas newtonien, seule la tension de surface peut s'opposer à cet effet, et donne une contribution d'ordre $c\Sigma$, avec c la courbure locale. Dans l'état stationnaire, on a donc $c \sim \eta_{ext}\dot{\gamma}/\Sigma$, et la courbure augmente bien quand $\dot{\gamma}$ augmente (comme nous le voyons sur la courbe 2.11). Si la viscoélasticité devient importante, alors il faut tenir compte des effets de contraintes normales liés aux polymères, qui donnent une contribution en $\eta_p\tau_p\dot{\gamma}^2$ (en effet, les différences des contraintes normales sont essentiellement quadratiques en $\dot{\gamma}$ dans le cas d'un liquide d'OLDROYD B : voir paragraphe 1.3.3). On obtient donc une courbure en $(\eta_{ext} - \eta_p\tau_p\dot{\gamma})\,\dot{\gamma}/\Sigma$, soit encore, en variables adimensionnées :

$$c = Ca\,(1 - CaDe) \tag{2.10}$$

Cette quantité devient bien négative quand De dépasse un certain seuil. Naturellement, ce genre d'approche heuristique ne doit pas être considéré comme une justification rigoureuse, mais néanmoins, nous pensons que cette inversion de courbure résulte bien d'un effet élastique lié aux différences de contraintes normales provoquées par l'allongement des polymères. Le même type d'argument pourrait d'ailleurs s'appliquer aux expériences réalisées sur les gouttes viscoélastiques en sédimentation [155], puisque l'écoulement à l'intérieur de la goutte est sensiblement le même que dans notre cas. Dans ce cas, la rhéofluidité du liquide n'est plus essentielle, et d'ailleurs, notre modèle d'OLDROYD B ne possède pas cette propriété. Par contre, l'axisymétrie joue certainement un rôle important dans ce cas puisque l'écoulement est fortement contraint au niveau de l'extrémité de la goutte.

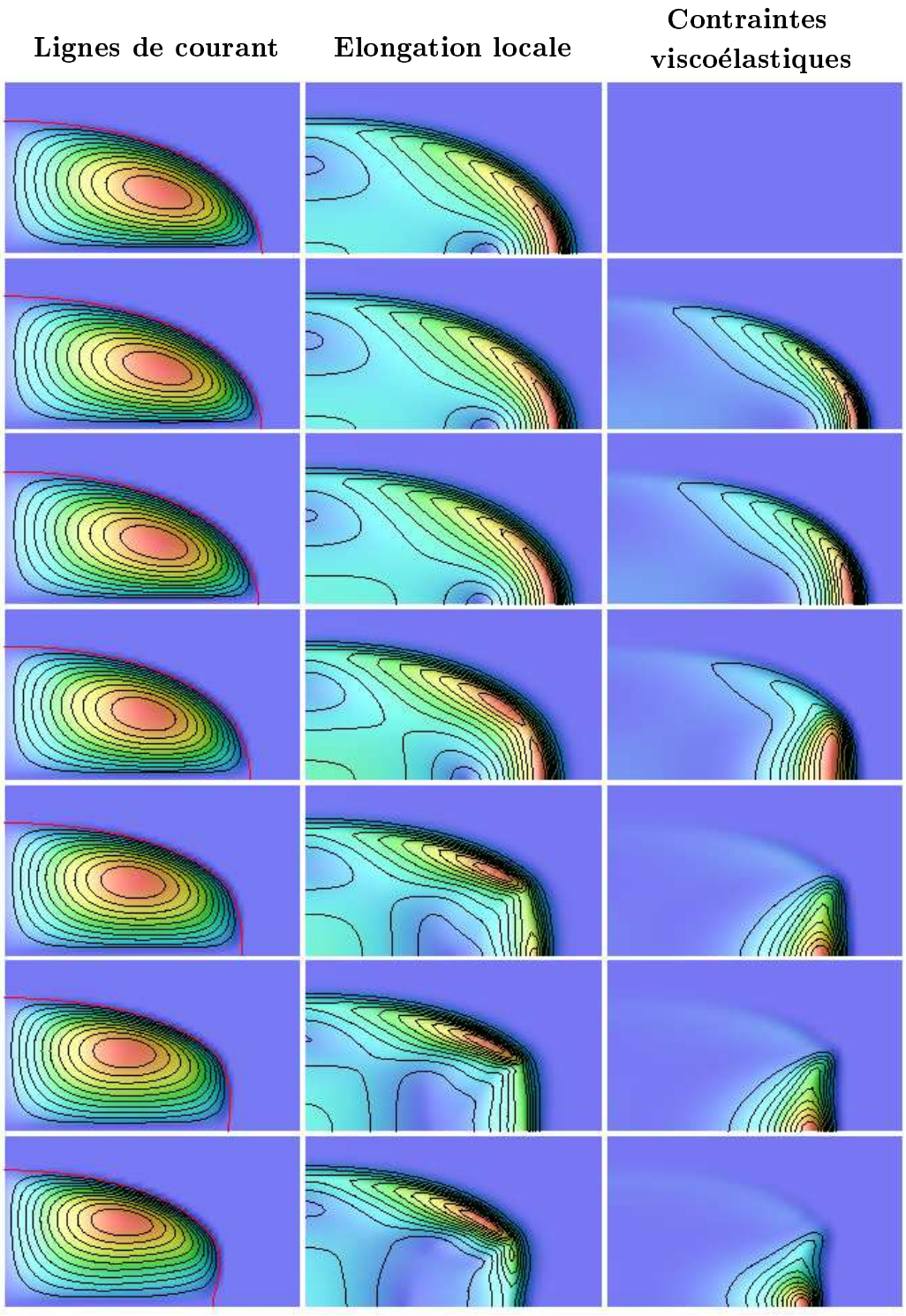


FIG. 2.12 – *Sur chaque ligne : lignes de courant, taux d'élongation local et contrainte viscoélastique pour une valeur de De fixée (0, 0,1, 1, 3,16, 5,62, 7,5 et 10). Le nombre capillaire a été fixé à 0,1125, ce qui correspond aux déformations stationnaires les plus importantes.*

Chapitre 3

Vers la rupture

Nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les états stationnaires sont doublement affectés par la présence de polymères à l'intérieur de la goutte. D'une part, la courbe de déformation en fonction du capillaire traduit une résistance accrue quand le nombre de DEBORAH augmente, et d'autre part, la forme des gouttes devient très différente du cas newtonien quand la viscoélasticité devient importante.

Dans ce dernier chapitre consacré aux gouttes, nous avons voulu dans un premier temps étudier l'influence de la viscoélasticité sur la rupture des gouttes viscoélastiques, ce qui constitue la suite logique aux travaux du chapitre précédent. Nous essaierons ensuite d'illustrer l'instabilité de RAYLEIGH-TOMOTIKA, responsable de la déstabilisation d'un cylindre de liquide en présence de tension de surface. Nous allons nous limiter à des DEBORAH de l'ordre de l'unité, les paramètres numériques nécessaires à ces simulations impliquant des temps de calcul très importants. Cette dernière approche nous permettra de conclure que la méthode du champ de phase reste utilisable en pratique pour traiter qualitativement des problèmes de changement topologique, y compris en présence d'effets assez fortement non linéaires (viscoélasticité).

3.1 Perte de stabilité et rupture en élongation

L'état stationnaire que nous avons étudié dans le chapitre précédent cesse d'exister à partir du moment où les contraintes appliquées par l'écoulement deviennent trop importantes par rapport aux forces capillaires. Cette perte de stabilité est naturellement suivie par la rupture de la goutte, qui intervient quand sa largeur est comparable à l'épaisseur de l'interface. Dans le cas idéalisé de l'absence de fluctuations, la largeur des interfaces réelles de liquides simples peut être estimée à une dizaine de nanomètres. En présence de fluctuations thermiques, on peut définir une épaisseur effective qui contiendra les ondes capillaires thermiques, décrites sur la base des fluctuations hydrodynamiques [53, 91]. Le résultat important est que les fluctuations thermiques deviennent

importantes quand la distance entre deux interfaces devient de l'ordre de [53] :

$$r_{crit} = 5l_\nu \left(\frac{l_T}{l_\nu}\right)^{0,401} \tag{3.1}$$

avec l_ν le libre parcours moyen dans le liquide ($l_\nu \sim 2$ à 3 $\mathring{A}$ dans le glycérol) et l_T la longueur d'onde capillaire ($l_T^2 \sim k_B T/\Sigma$). Pour le glycérol dans l'eau, on obtient une taille critique de l'ordre du μm. En dessous de cette épaisseur, la probabilité d'intersection des interfaces, et donc la rupture, devient non négligeable. L'épaisseur introduite par le modèle du champ de phase est de l'ordre de quelques % du rayon de la goutte (voir chapitre 1). Pour une goutte d'une centaine de μm, on obtient ainsi une longueur comparable à r_{crit} : les effets liés aux fluctuations des interfaces sont en quelque sorte contenus de manière effective dans le schéma numérique. En présence de fluctuations dans l'écoulement imposé, les interfaces vont naturellement interagir bien plus tôt. Enfin, les temps nécessaires au drainage du liquide entre les deux interfaces sont d'autant plus longs que la goutte est allongée, ce qui peut ralentir considérablement l'apparition de la perte de stabilité et la rupture effective.

Quoi qu'il en soit, il est possible de définir un nombre capillaire critique, que nous noterons Ca_c, qui correspond au plus grand capillaire pour lequel un état stationnaire reste défini [1]. La question légitime qui se pose alors est la suivante : quelle est la dépendance de Ca_c vis-à-vis des autres paramètres du système, notamment le rapport de viscosités λ et la viscoélasticité, caractérisée par le nombre de DEBORAH De ?

3.1.1 Brève revue bibliographique

Cas newtonien

Expérimentalement, le dispositif reste inchangé, il s'agit toujours des quatre rouleaux de TAYLOR, modifiés par BENTLEY & LEAL, que nous avons présentés dans le chapitre précédent. Deux situations doivent toujours être distinguées. Dans un écoulement de **cisaillement**, nous l'avons vu, un état stationnaire est toujours défini pour des rapports de viscosités supérieurs à 3.5 [160]. Plus précisément, le nombre capillaire critique diverge pour $\lambda \to 3.5$, comme cela a été mesuré expérimentalement par GRACE [66]. Avec un dispositif différent (deux plaques parallèles en translation uniforme), d'autres auteurs ont pu mesurer la répartition en taille des gouttelettes produites au moment de la fragmentation [38]. Le mécanisme de rupture est complexe et dépend du rapport Ca/Ca_c. Juste au-dessus du seuil, cinq fragments sont en général observés, mais au-delà, un filament très mince se développe dans la direction

1. De façon équivalente, on pourrait définir une déformation critique D_c, qui serait la déformation obtenue avec un capillaire Ca_c

du cisaillement, et peut se déstabiliser pour former jusqu'à 10^4 gouttelettes pour $Ca/Ca_c \sim 20$ [66, 127]. Dans ces mesures, il est souvent difficile de déterminer si la morphologie mesurée correspond à un régime transitoire, qui peut être très long pour des rapports de viscosités de l'ordre de l'unité, ou à une véritable situation de rupture. Ces temps très longs demandent un contrôle très fin de la position de la goutte au centre du dispositif. Dans un écoulement d'**élongation**, les seuils de rupture ont pu être déterminés sur plus de cinq décades en rapport de viscosités par GRACE [66], puis par BENTLEY & LEAL [16].

Numériquement, les difficultés deviennent rapidement très importantes. Rappelons en effet que les méthodes traditionnelles basées sur une discrétisation de l'interface et un suivi explicite des points du maillage ne permettent pas de rendre compte du mécanisme de rupture, à moins d'introduire de façon *ad hoc* un critère de rupture. En quelque sorte, cela revient à introduire de façon heuristique une épaisseur effective pour l'interface.

La dynamique de rupture peut malgré tout être obtenue différemment : dans la référence [38], les auteurs parviennent à estimer le temps de rupture en supposant une loi d'échelle pour l'amincissement de la goutte, et en extrapolant le comportement dynamique jusqu'à la cassure. Il est malgré tout nécessaire de procéder à un remaillage de l'interface quand la déformation devient très importante. Ces études sont remarquables parce qu'elles ont été effectuées en cisaillement, et que la dynamique de rupture est précisément très lente dans ce cas.

Les seuils de stabilité peuvent cependant être obtenus plus simplement car ils ne nécessitent pas une étude de la dynamique de rupture proprement dite. Analytiquement, les méthodes de faibles déformation [7, 162, 163] peuvent être extrapolées jusqu'à la perte de stabilité et permettent ainsi une estimation du seuil de rupture. De façon très surprenante, ces modèles donnent de très bons résultats quand ils sont confontés aux expériences [160]. A deux dimensions, BUCKMASTER & FLAHERTY ont pu utiliser des techniques basées sur l'emploi des fonctions analytiques pour estimer la courbe de déformation en fonction du capillaire, jusqu'au seuil de rupture [22] qui est déterminé à partir du maximum de cette courbe. Les auteurs suggèrent également que la perte de stabilité intervient à partir du moment où la courbure de la goutte dans la direction perpendiculaire à la direction d'élongation s'annule : à deux dimensions, la perte de stabilité semble associée à la perte de convexité de la goutte, ce qui met en jeu sa partie centrale. Nous reviendrons sur ce point dans la suite de ce paragraphe.

Les méthodes de champ de phase que nous avons utilisées dans ce travail permettent *a priori* de prédire les seuils de rupture à partir de la perte de stabilité des équations dynamiques. Ainsi, même si la rupture n'est pas effectivement observée, le seuil peut être déterminé avec précision [19]. La confrontation avec les résultats expérimentaux de GRACE [66] notamment s'est averée suffisam-

ment encourageante pour étendre ces études au cas viscoélastique. Enfin, nous pouvons également étudier la dynamique de rupture proprement dite.

Cas viscoélastique

Dans le cas viscoélastique, les études deviennent rapidement très complexes, ne serait-ce que pour définir ou mesurer précisément les paramètres caractéristiques du problème. Expérimentalement, MILLIKEN & LEAL ont étudié plusieurs situations, purement élastique ou viscoélastique [104]. L'écoulement était alors imposé par un dispositif en quatre rouleaux. Les seuils de stabilité ainsi mesurés ne différent pas sensiblement du cas newtonien pour les rapports de viscosités supérieurs à 1. Pour les faibles valeurs de λ, ces seuils sont par contre sensiblement abaissés.

Analytiquement, les travaux de MAFFETONE & GRECO [99] permettent de conclure que les seuils de stabilité ne sont pas franchement modifiés par la viscoélasticité, que ce soit en cisaillement ou en élongation. La viscoélasticité était décrite par un modèle d'ordre deux (voir page 53), qui ne présente par conséquent aucun caractère rhéofluidifiant [23, 155]. Ces études étaient limitées à un rapport de viscosités compris entre 0,1 et 10. Qualitativement, ces résultats sont en bon accord avec les observations expérimentales [16].

Numériquement enfin, les études que nous avons déjà mentionnées dans le chapitre précédent ne permettent pas de prédire le comportement de la goutte dans le cas de grandes déformations, et par conséquent les seuils de stabilité ne peuvent pas être ainsi déterminés.

3.1.2 Seuils de stabilité en terme de champ de phase

Tout d'abord, il faut signaler que les calculs que nous avons effectués dans le chapitre précédent nous permettent d'obtenir une estimation du capillaire critique. En effet, à partir des profils obtenus dans l'état stationnaire pour différentes valeurs de Ca et De, il est possible de mesurer la courbure gaussienne de la goutte dans le plan perpendiculaire à la direction d'élongation ($z = 0$). Cette quantité joue un rôle similaire à la courbure dans le cas bidimensionnel traité par BUCKMASTER & FLAHERTY [21]. Par ailleurs, nous savons que cette quantité joue un rôle important dans la description topologique des surfaces, par l'intermédiaire du théorème de GAUSS-BONNET qui relie l'intégrale de la courbure gaussienne au genre topologique de la surface [27]. Les résultats sont représentés sur la figure 3.1.

Nous remarquons que toutes les courbes se superposent, indépendamment du nombre de DEBORAH, ce qui nous incite déjà à penser qu'une certaine universalité est associée à la perte de stabilité. A partir de ces données brutes, il est possible d'obtenir une estimation du capillaire critique en ajustant la loi $\sqrt{1 - Ca/Ca_c}$ avec Ca_c comme paramètre. Nous obtenons alors $Ca_c \sim 0{,}13$, relativement proche des 0,11 obtenus dans le cas newtonien par dichotomie.

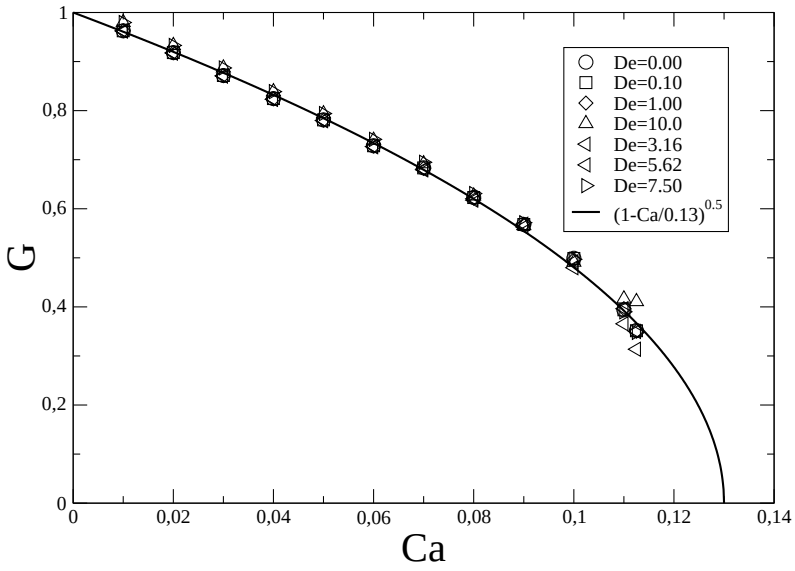


FIG. 3.1 – *Courbure gaussienne dans le plan orthogonal à la direction d'élongation, en fonction du nombre capillaire Ca. Les symboles représentent les résultats numériques, et la courbe en trait plein une régression par $\sqrt{1 - Ca/Ca_c}$, avec $Ca_c \sim 0{,}13$.*

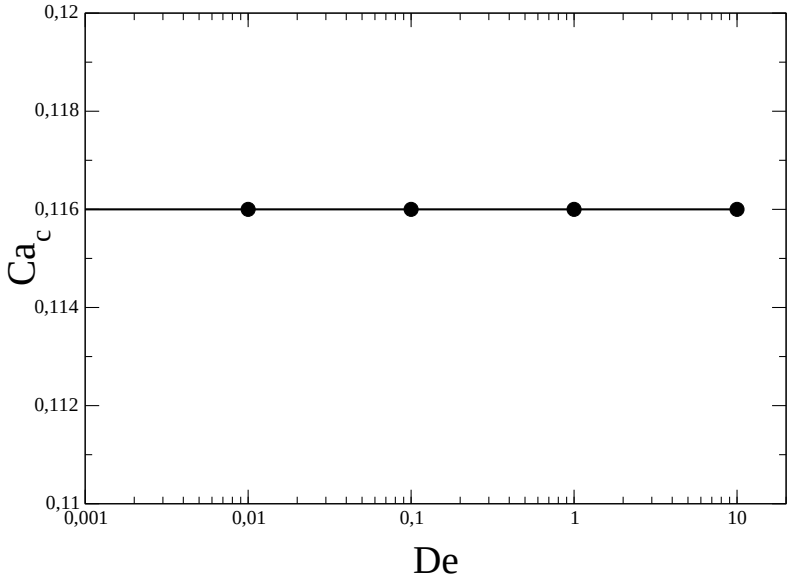


FIG. 3.2 – *Seuils de stabilité en fonction du nombre de* DEBORAH *(échelle logarithmique en abscisse). Les barres d'erreur du calcul numérique sont d'une taille inférieure à celle des points.*

Nous avons d'ailleurs utilisé cette méthode pour déterminer plus finement les seuils de stabilité. Notre algorithme ne permet pas d'observer la rupture proprement dite[2], mais nous voyons sur la figure 3.2 la valeur des seuils de stabilité en fonction du nombre de DEBORAH. Comme cela nous avait été suggéré par notre raisonnement initial, aucune influence de ce paramètre n'est observée sur Ca_c. La précision de notre calcul a été poussée jusqu'à une valeur relative de 10^{-4}. Il faut signaler également que les calculs analytiques de la référence [99] donnent des résultats assez similaires dans le cas d'une élongation bidimensionnelle ou d'un cisaillement pur. Nous pouvons expliquer schématiquement ce résultat *a priori* surprenant à partir des résultats que nous avons déjà obtenus dans le chapitre précédent sur les états stationnaires. En effet, nous étions parvenus à la conclusion que les effets viscoélastiques dominants avaient lieu aux extrémités de la goutte. Au-delà du seuil, on s'attend à ce que cet effet ne soit pas profondément modifié, surtout au voisinage de Ca_c. Or la perte de stabilité est plutôt associée à la partie centrale de la goutte d'après BUCKMASTER & FLAHERTY [22].

3.1.3 Au-delà du seuil

Nous voyons sur la figure 3.3 l'évolution de la longueur L pour différentes valeurs de De (de 0 à 10), avec un capillaire de 0,12. Manifestement, aucun état stationnaire n'est atteint, et nous sommes bien au-delà du seuil de stabilité. Le dernier point de ces courbes correspond au dernier point numériquement représentatif obtenu dans notre simulation.

Nous voyons également sur cette figure 3.3 que la **dynamique** de rupture est fortement affectée par la viscoélasticité. En effet, le point d'inflexion des courbes $L(t)$, qui correspond au début de la divergence de l'élongation, n'est pas une fonction monotone du nombre de DEBORAH.

Nous avons représenté sur la figure 3.4 la courbure moyenne le long de l'axe d'élongation pour différentes valeurs de De. Une inversion de courbure analogue à celle que nous avions observée dans le cas stationnaire apparaît pour $De > 5$, qui était déjà la valeur frontière dans le chapitre précédent. Une seconde inversion apparaît ensuite pour ces valeurs de De, quand la perte de stabilité devient effective. Nous interpréterons ces résultats dans le prochain paragraphe.

Nous avons également mesuré la courbure gaussienne dans le plan $z = 0$, orthogonal à la direction d'élongation (figure 3.5). Cette fois encore, un comportement non monotone est visible, en particulier pour le temps de première

2. La grille utilisée dans ces simulation contenait 1000*250 nœuds, soit une longueur dans la direction d'élongation environ 30 fois supérieure à la taille de la goutte. Par contre, la dynamique devient très rapide au moment de la rupture, surtout en élongation (qui présente un comportement exponentiel). Des instabilités d'avection apparaissent alors, que nous n'avons pas pu supprimer.

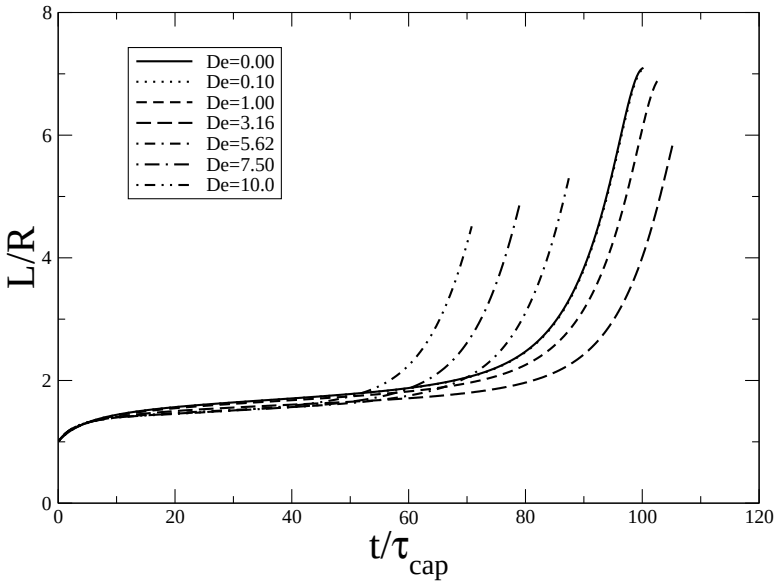


FIG. 3.3 – *Paramètre de déformation $D = (L - B)/(L + B)$ en fonction du temps (en unités τ_{cap}) pour différentes valeurs du nombre de* DEBORAH. *Les derniers points sur ces courbes correspondent aux dernières valeurs obtenues par notre algorithme, avant divergence.*

annulation de G, qui correspond au changement de convexité du profil de la goutte. Dans tous les cas, G passe ensuite par un minimum avant de tendre à nouveau vers 0, ce qui correspond à la formation d'un col quasi cylindrique reliant les deux extrémités de la goutte.

Nous avons essayé de mettre en évidence plus clairement cette non monotonie en représentant sur le graphe 3.6 les temps de première annulation de la courbure gaussienne G et d'inflexion de la courbe $L(t)$, en fonction du nombre de DEBORAH. Ces deux phénomènes n'apparaissent pas aux mêmes instants, mais l'allure des courbes est bien la même dans les deux cas. La courbure gaussienne semble donc bien être une quantité pertinente pour quantifier la rupture. Toutefois, le changement de concavité de $L(t)$ intervenant beaucoup plus tôt, ce paramètre pourrait être intéressant dans un contexte expérimental où les temps de rupture effectifs peuvent parfois être très longs, comme nous l'avons mentionné plus haut.

Enfin, nous avons représenté sur la figure 3.7, page 86 les profils des gouttes pour De variant de 0 à 10 avec un capillaire de 0,12. Nous avons donc $Ca/Ca_c \sim 1{,}034$. Les différences dans la dynamique de rupture sont clairement illustrées ici : le profil rouge correspond en effet au même instant $t = 70$

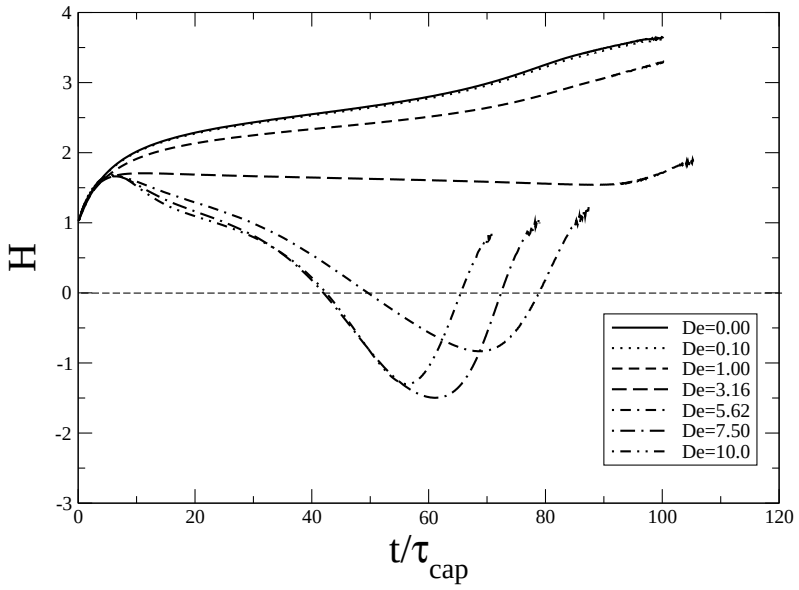


FIG. 3.4 – *Courbure moyenne le long de l'axe d'élongation pour* $Ca = 0{,}12$ *et De variable entre 0 et 10.*

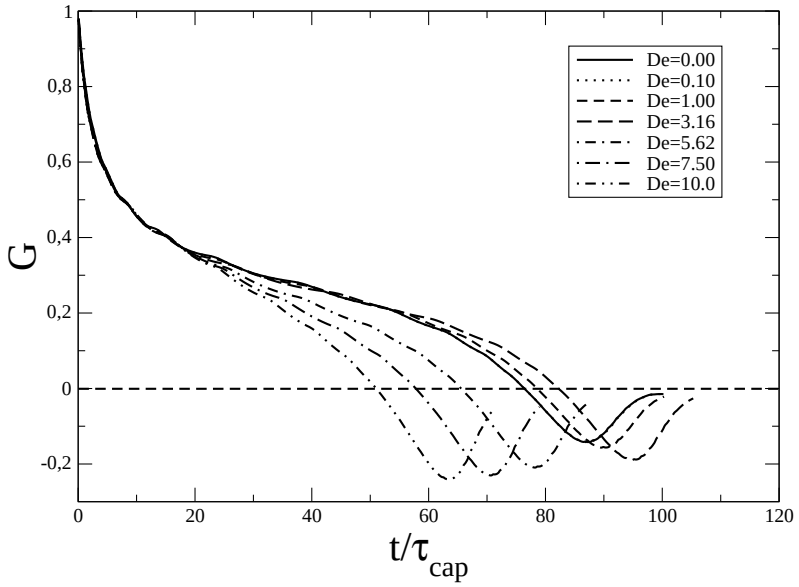


FIG. 3.5 – *Courbure gaussienne dans le plan médian pour* $Ca = 0{,}12$ *et De variable entre 0 et 10.*

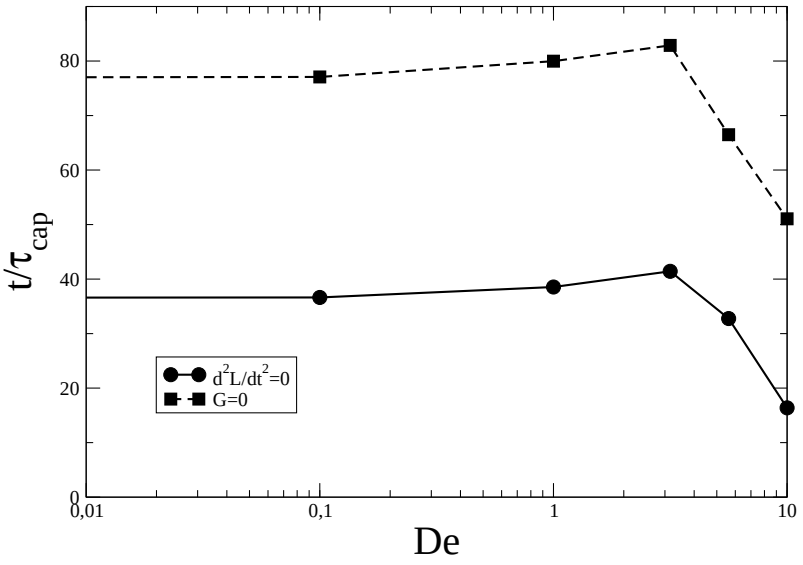


FIG. 3.6 – *Dynamique de la rupture quantifiée par deux paramètres, le temps de première annulation de la courbure gaussienne et le temps d'inflexion de $L(t)$, en fonction du nombre de* DEBORAH *(échelle logarithmique en abscisse).*

τ_{cap}.

3.1.4 Discussion

Ainsi, il est clair qu'à partir du moment où la courbure gaussienne s'annule, la dynamique de la goutte ne pourra évoluer que vers la rupture. Quelle que soit la valeur de De, il semble que cette annulation de G apparaisse systématiquement pour $Ca \sim 0{,}116$. Par contre, la viscoélasticité va jouer un rôle sur les aspects dynamiques. Nous avons représenté sur la figure 3.8, page 87 les lignes de courant, les taux de déformation et les contraintes viscoélastiques pour $De = 10$ et $Ca = 0{,}12$ (mêmes définitions que dans le chapitre précédent). Aux temps courts, (typiquement, $t < 45\tau_{cap}$), la goutte se comporte sensiblement de la même manière que dans le cas stationnaire : l'écoulement interne est rotationnel, les taux de déformation dans le liquide sont d'abord localisés sur la pointe, puis écrantés par le développement de contraintes viscoélastiques fortes liées à l'étirement des chaînes de polymère.

Au delà de $t \sim 45\tau_{cap}$, l'allure des lignes de courant change radicalement. L'écoulement est totalement dominé par l'élongation appliquée, et en conséquence de forts taux d'élongation apparaissent au centre de la goutte

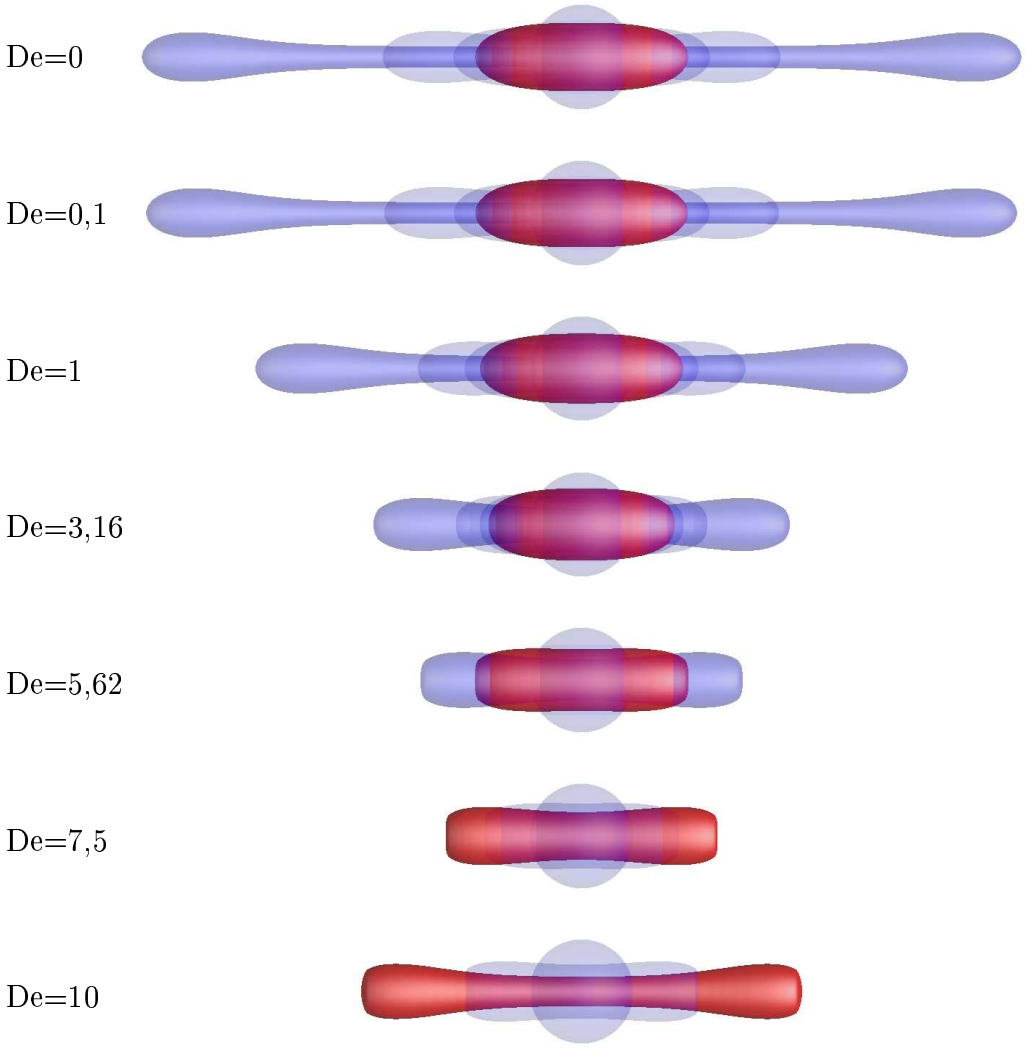


FIG. 3.7 – *Profil des gouttes en situation non stationnaire pour* $Ca = 0{,}12$ *et De variable entre 0 (en haut) et 10 (en bas).*

(colonne centrale). Ceci provoque l'apparition de contraintes viscoélastiques à ce niveau, et une accélération brusque de la dynamique (voir figure 3.3). En effet, l'écoulement au centre étant essentiellement élongationnel, des contraintes fortes sont appliquées sur les chaînes de polymères. Concernant les pointes, l'élongation appliquée tend à faire disparaître les inversions de courbure, simplement parce que la vitesse est maximale sur l'axe.

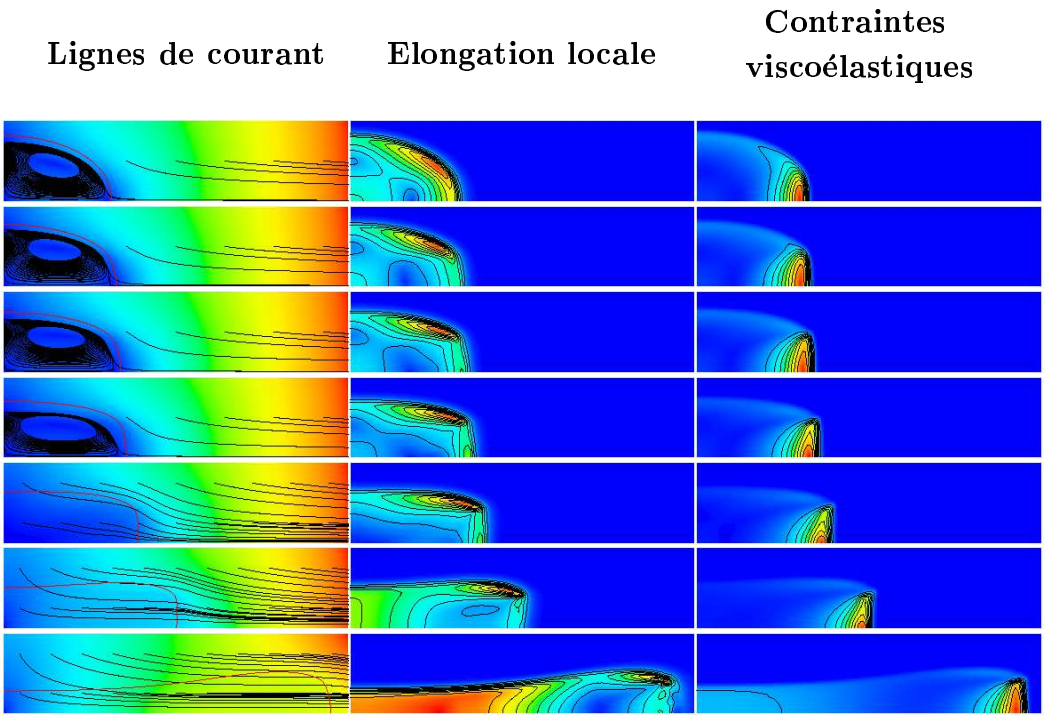


FIG. 3.8 – *Sur chaque ligne: lignes de courant, taux d'élongation local et contrainte viscoélastique pour* $Ca = 0{,}12$ *(*$Ca/Ca_c = 1{,}034$*) et* $De = 10$. *Les temps correspondant à chaque ligne sont 10, 20, 30, 40, 50 et 70* τ_{cap}.

3.2 L'instabilité de Rayleigh-Tomotika en régime viscoélastique

Pour finir ce chapitre, nous avons voulu illustrer de façon critique la capacité du modèle de champ de phase à prendre en compte de manière effective les mécanismes de rupture. Dans le cas d'un écoulement appliqué purement élongationnel, le système devenait très instable d'un point de vue numérique : la dynamique très rapide imposée par l'élongation aurait demandé un raffinement trop couteux en terme de pas de temps d'intégration. En conséquence, la séparation effective de la goutte de départ n'a pas pu être observée.

Nous avons donc modélisé la relaxation d'une goutte initialement allongée et laissée libre de relaxer. Une compétition complexe entre les effets liés aux instabilités capillaires de type RAYLEIGH (effets de tension de surface) et la rétraction des pointes de la goutte (dont la dynamique dépend du rapport de viscosités λ) conduit à une fragmentation. L'instabilité capillaire se développe essentiellement au centre de la goutte. Il s'agit d'un effet purement géométrique : le cylindre n'étant pas une surface minimale pour un volume fixé, une pertubation sera systématiquement déstabilisée et conduira *in fine* à la rupture, même pour un cylindre infini.

Expérimentalement, les gouttes sont d'abord étirées au delà du seuil de déformation critique, puis relachées. Les paramètres qui déterminent le nombre de fragments sont au nombre de 3. Outre le rapport de viscosités, il faut également tenir compte de la vitesse initiale d'élongation, caractérisée par le nombre capillaire Ca[3], ainsi que de l'allongement de la goutte avant la relaxation [69].

Une étude théorique de la croissance des perturbations sur un cylindre en relaxation ou un filament en élongation a été effectuée par TOMOTIKA dans les années 30, dans le régime newtonien [167, 168]. Les résultats essentiels sont les suivants [53] :

- la longueur d'onde des perturbations augmente au fur et à mesure que le filament est étiré,
- la longueur d'onde du mode le plus instable et le taux de croissance de l'instabilité dépendent du rapport de viscosités,
- en relaxation, la longueur d'onde du mode le plus instable est de l'ordre de grandeur du rayon du cylindre,
- une croissance exponentielle n'apparaît que quand l'élongation est supprimée ou réduite.

Parallèlement à notre étude viscoélastique rudimentaire, une étude systématique dans le cas newtonien a été effectuée avec une méthode de champ de phase. Une fois de plus, la méthode du champ de phase s'est averée très quantitative. En particulier, le scénario de double restabilisation de HA & LEAL [69] a pu être reproduit[4] , même si les effets de taille finie se sont révélés cruciaux dans cette étude.

Il nous a semblé que le problème du sphérocylindre[5] en relaxation était plus simple *a priori*. Cette fois, la géométrie initiale est clairement définie par le rapport L/R, avec L la demie-longueur du sphérocylindre et R le rayon de la goutte au repos. Dans le cas newtonien, un processus complexe de restabilisations successives a été mis en évidence [15]. Un comportement chaotique peut même apparaître, mais au-delà de L/R=13, seuls des nombres impairs de fragments sont finalement obtenus. Pour de tels rapports d'aspects, une instabilité de type RAYLEIGH peut se développer au centre indépendamment de la rétraction des extrémités de la goutte. Or le centre est un point privilégié pour la nucléation de l'instabilité, comme cela avait déjà été observé par d'autres auteurs [159]. La distribution en taille des gouttes est très dispersée,

3. qui est nécessairement supérieur à Ca_c pour pouvoir potentiellement mener à la rupture. On parle parfois d'élongation **surcritique**.

4. Au faibles élongations initiales, la goutte ne casse pas, puis en augmentant la déformation, deux fragments sont obtenus, puis à nouveau un seul, et enfin trois aux plus grands étirements.

5. Un sphérocylindre n'est rien d'autre qu'un cylindre fermé à ses deux extrémités par une demie sphère.

mais en moyenne, la prédiction de TOMOTIKA est bien vérifiée. Malgré tout, nos objectifs ici restent très modestes, et nous ne chercherons qu'à mettre en évidence qualitativement les phénomènes : l'importance des effets de taille finie couplée au nombre important de variables dynamiques rend particulièrement fastidieuse une étude exhaustive de ce problème.

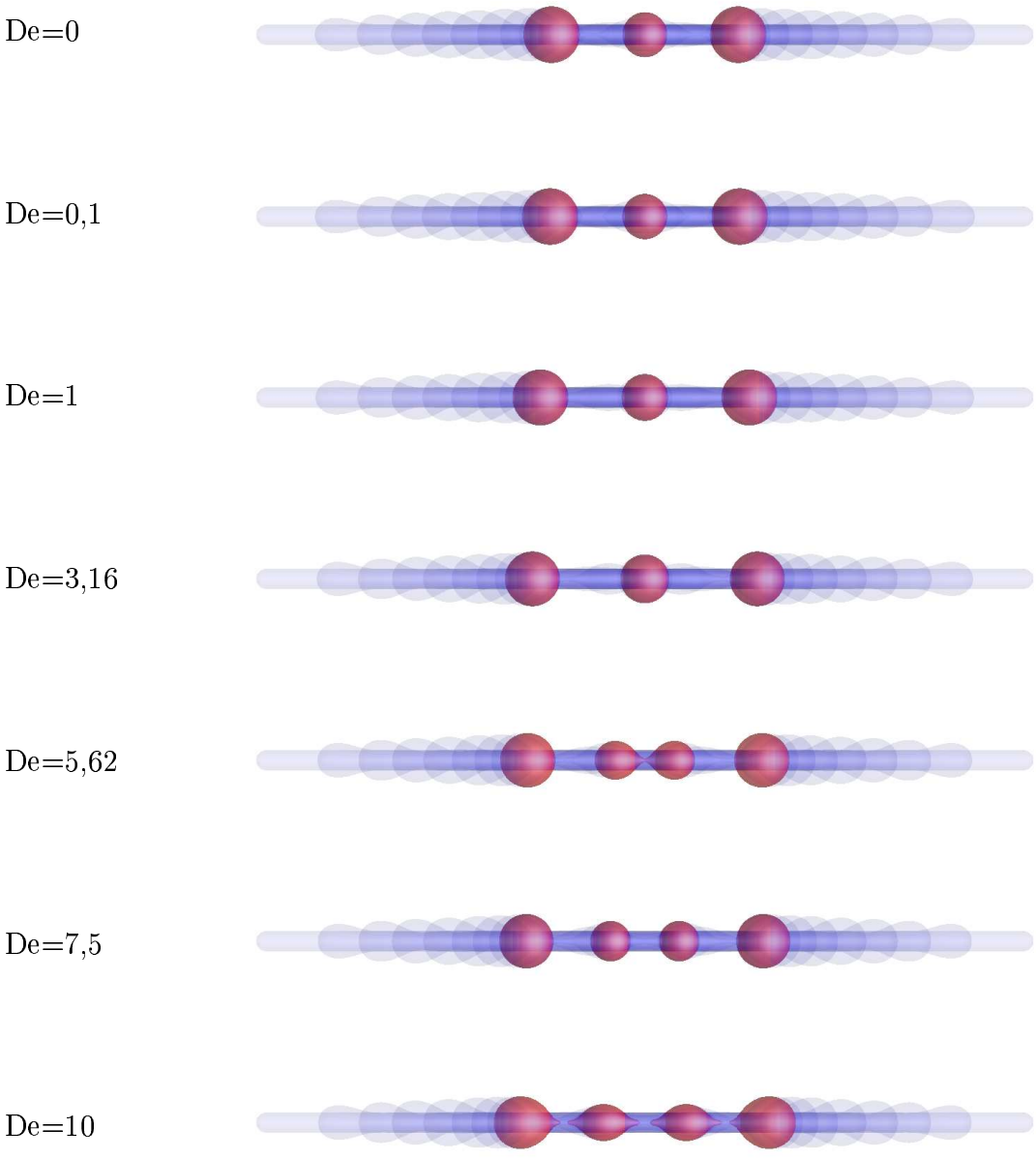


FIG. 3.9 – *Profil des gouttes en relaxation (L/R=10) pour De entre 0 et 10.*

Notre point de départ est donc un sphérocylindre de longueur $L = 10R$. Nous avons travaillé ici avec une grille 800*200, ce qui représente 24*6 R^2, avec R le rayon de la goutte au repos. La relaxation vers l'état d'équilibre est représentée sur la figure 3.9. La simulation a été effectuée entre t=0 et t= 100 τ_{cap}. Plusieurs remarques doivent être faites. Les profils rouges correspondent aux dernières configurations obtenues numériquement. Dans tous les cas, elles correspondent bien à t=100 τ_{cap}, sauf pour De=5,62 (t=80 τ_{cap}) et De=10 (t=75 τ_{cap}). Dans ce dernier cas cependant, on voit que la rupture a été prise en compte effectivement : quatre fragments sont observés. De très fortes courbures sont nettement visibles pour ces deux valeurs de De (profils rouges) : nous avons donc une forte contrainte à cet endroit liée à la tension de surface, donc un écoulement assez fort, et nous retrouvons finalement le même type d'instabilité numérique que dans le chapitre précédent sur la rupture en élongation.

D'autre part, le nombre de fragments obtenus dépend du nombre de DEBORAH : de trois gouttelettes pour De=0 jusqu'à De=3,16, nous passons à quatre de De=5,62 à 10. La dynamique de rupture est elle aussi qualitativement affectée par la valeur de ce paramètre : nous avons représenté sur la figure 3.10 les profils de gouttes pour les DEBORAH que nous avons utilisés, à t = 75 τ_{cap}. Dans certains cas (De =0 et 0,1), la fragmentation n'a pas encore eu lieu, contrairement au cas De=3,16 par exemple. La rupture semble être accélérée par la présence de polymères dans la goutte.

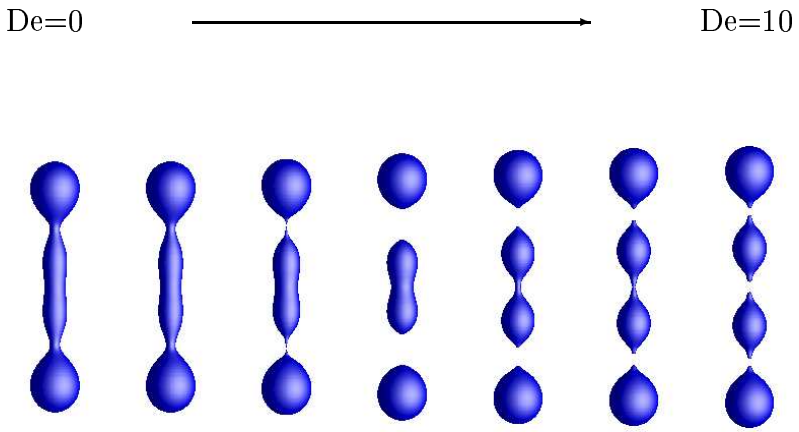


FIG. 3.10 – *Profil des gouttes en relaxation (L/R=10) pour De entre 0 et 10 (t=75τ_{cap}).*

Pour une goutte initialement plus allongée, avec un rapport d'aspect initial de 15, nous avons utilisé une grille de 1600*200 nœuds (48*6 R^2). Les temps de calcul devenant très prohibitifs, nous nous sommes limités à un seul nombre de DEBORAH (De=1). La séquence de rupture est représentée sur la figure 3.11.

Nous obtenons finalement cinq gouttelettes.

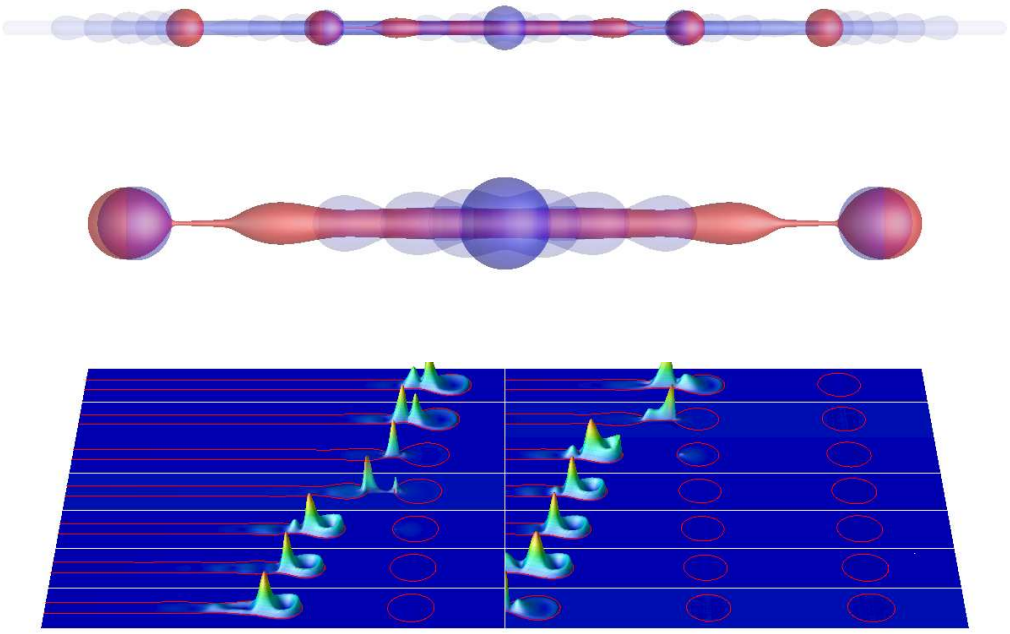


FIG. 3.11 – *Relaxation d'un sphérocylindre viscoélastique (L/R=15 et De=1). La simulation a été effectuée entre t=0 et 135 τ_{cap}. Contraintes viscoélastiques dans la moitié droite de la goutte. Une forte localisation des contraintes est visible à $t = 55\tau_{cap}$ et $t = 80\tau_{cap}$. Les images successives sont séparées par 5 τ_{cap}, entre 40 et 105 τ_{cap}.*

Sur la partie inférieure de la figure 3.11, nous avons représenté la trace du tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}_p$. A t=105 τ_{cap}, la goutte centrale ne casse pas, mais se restabilise par un processus déjà observé dans le cas newtonien [15]. Une localisation assez forte des contraintes viscoélastiques est visible à $t = 55$ τ_{cap} et $t = 80$ τ_{cap}. Les images successives sont séparées par 5 τ_{cap}, entre 40 et 105 τ_{cap}, de la façon suivante :

40 τ_{cap}	75 τ_{cap}
45 τ_{cap}	80 τ_{cap}
50 τ_{cap}	85 τ_{cap}
55 τ_{cap}	90 τ_{cap}
60 τ_{cap}	95 τ_{cap}
65 τ_{cap}	100 τ_{cap}
70 τ_{cap}	105 τ_{cap}

Il faut signaler ici que plusieurs études analytiques de RENARDY sur la fragmentation de **jets** ont montré que l'introduction d'effets viscoélastiques par le

biais d'une équation constitutive de type OLDROYD B supprimait cette fragmentation [132, 133, 134]. Le cas newtonien avait été étudié par EGGERS [53], et un comportement asymptotique autosimilaire avait été mis en évidence : les jets newtoniens cassent en temps fini du fait de la tension de surface. De telles études trouvent un écho industriel important dans le secteur de l'impression par jet d'encre, ou de la déposition de polymères pour la conception de diodes luminescentes par exemple [17].

Dans le cas viscoélastique, le développement initial de l'instabilité est plus rapide, mais dans les régimes fortement non linéaires, une stabilisation apparaît et conduit à la formation de filaments [133]. Cette absence de rupture est manifestement liée aux pathologies du modèle d'OLDROYD B déjà évoquées précédemment. La modélisation des polymères par une loi de type FENE conduit en effet à la rupture [134]. Ces structures filamentaires ont également été observées expérimentalement dans des systèmes de gouttes pendantes [4], ou de liquides viscoélastiques injectés dans un autre liquide, purement visqueux cette fois [157].

Le cas des jets est bien sûr différent de notre système : il s'agit en effet d'un liquide en translation uniforme dans l'air, qui n'introduit pas de contraintes visqueuses supplémentaires au niveau de l'interface. Néanmoins les arguments avancés par RENARDY sont suffisamment généraux pour revoir nos résultats de façon critique. Dans notre simulation, l'épaisseur très importante des interfaces, conséquence du modèle de champ de phase, provoque une rupture prématurée des structures. Ces effets liés à l'épaisseur de l'interface ne sont pas pris en compte dans les études analytiques. Par contre, il est clair d'un point de vue expérimental que les filaments liquides, même s'ils contiennent des polymères, finissent par casser aux temps longs (parfois plusieurs dizaines de minutes pour des filaments de quelques μm) [157]. Une solution facile à mettre en œuvre numériquement pour nous rapprocher de la réalité expérimentale consiste à raffiner le maillage pour permettre une description plus fine de l'interface, mais les efforts numériques deviennent alors très prohibitifs en terme de temps de calcul. Nous pensons néanmoins que la localisation des contraintes viscoélastiques évoquées précédemment (voir figure 3.11) peut être interprétée comme la signature de l'apparition de filaments.

Une dernière remarque est encore nécessaire. La situation expérimentale est beaucoup plus complexe que notre cas idéalisé, et ceci pour deux raisons au moins. La première concerne la forme initiale de la goutte. Si nous reprenons la figure 3.7, qui représente les profils de gouttes en élongation pour un capillaire surcritique de 0,12, il est tout-à-fait clair que le sphérocylindre ne constitue qu'une approximation "d'ordre 0" du problème. Les bourrelets nettement visibles aux extrémités de la goutte, surtout dans le cas viscoélastique, ne sont pas pris en compte. Ceci aura bien sûr une certaine importance sur la dynamique de rétraction des pointes. Par ailleurs, l'élongation initiale des gouttes provoque une localisation des contraintes viscoélastiques au niveau des pointes

qui n'est pas non plus prise en compte dans notre simulation. Nous supposons en effet que la goutte n'est pas pré-contrainte avant la relaxation. Ce dernier point est sans doute moins important et n'aurait une importance réelle que dans les premiers instants du processus de restabilisation, sauf peut-être pour les plus grandes valeurs du nombre de DEBORAH.

Troisième partie

Dynamique de vésicules

Chapitre 1

Dynamique de vésicules sous cisaillement

Jusqu'à présent, nous nous sommes limités à la description de phénomènes aux frontières libres ne faisant intervenir que des liquides immiscibles. Nous l'avons vu, l'interface peut dans ce cas être décrite en termes purement géométriques, ce qui rend particulièrement efficaces les méthodes de type champ de phase que nous avons utilisées. Nous allons voir dans ce dernier chapitre que cette méthode est suffisamment souple pour autoriser la modélisation d'objets ayant une structure interfaciale beaucoup plus riche, les **vésicules**. Nous allons nous restreindre à leur dynamique sous cisaillement, dans une configuration purement bidimensionnelle qui nous donnera une plus grande aisance en terme de temps de calcul, sans pénaliser la richesse ni la pertinence du système. Ce dernier point sera d'ailleurs discuté par la suite. Dans le premier chapitre, après avoir brièvement rappelé la structure microscopique particulière de la membrane vésiculaire ainsi que les propriétés mécaniques mésoscopiques qui en résultent, nous étudierons l'influence du rapport de viscosités sur son comportement dynamique. Ce type de système ayant fait l'objet d'une modélisation analytique simple et se prêtant par ailleurs particulièrement bien à une modélisation sous forme d'intégrale de frontière (du fait de la linéarité des équations de Stokes), ce chapitre nous permettra de valider notre méthode par confrontation directe. Ensuite, dans un souci de nous rapprocher des systèmes expérimentaux réels, nous étudierons l'influence du **confinement** sur cette dynamique. Dans le second chapitre, nous verrons comment le comportement de la vésicule sous cisaillement est affecté par la présence d'une **paroi déformable**. En particulier, nous allons nous focaliser sur la **force de portance** qui résulte du couplage élasto-hydrodynamique entre l'écoulement et la paroi. Notre approche numérique sera ici soutenue par un calcul perturbatif simple aux faibles déformabilités de la paroi. Les déroulements fastidieux des calculs de ce chapitre seront rejetés en annexe.

Enfin, nous conclurons par une comparaison des propriétés mécaniques

des vésicules et des **globules rouges**. En effet, l'engouement certain d'une large communauté de physiciens de la matière molle pour les vésicules tient en grande partie à leurs remarquables propriétés **biomimétiques** à l'équilibre. Nous verrons dans quelle mesure ce modèle reste valable pour les situations **hors équilibre** qui nous ont intéressées dans ce travail. En particulier, une étude des nombres sans dimension caractéristiques des modes de déformations de ces deux objets nous permettra de conclure que le modèle des vésicules est un bon candidat pour la modélisation des globules rouges. Par ailleurs, nous verrons dans quelle mesure le modèle de paroi déformable que nous avons mis en place dans le second chapitre peut s'avérer pertinent dans un contexte biologique, notamment pour la modélisation d'écoulements dans les capillaires sanguins, tapissés d'un couche de gel déformable (le **glycocalyx**).

1.1 Description mécanique des vésicules

Une vésicule est une membrane fermée composée d'une bicouche de phospholipides [94, 139]. La taille typique de ces objets varie de quelques dizaines de nanomètres (jusqu'à 100 nm on parle de SUV, pour "Small Unilamellar Vesicles") à quelques μm (LUV: "Large Unilamellar Vesicles"), voire même 100 μm (GUV: "Giant Unilamellar Vesicles", ou "vésicules géantes"). Ce sont naturellement les vésicules de cette dernière catégorie qui sont les plus intéressantes d'un point de vue expérimental, pour de simples raisons d'observation. Notons que la dénomination "unilamellaire" est peut-être restrictive : dans une population de vésicules, on observe en général un certain nombre de vésicules multilamellaires, formées d'un empilement concentrique de plusieurs bicouches. On parle parle parfois de MLV, acronyme de "Multi Lamellar Vesicles", ou plus simplement de phase "oignon" dans les cas extrêmes [138] (voir figure 1.5, page 105) [1].

1.1.1 Les molécules amphiphiles

Les phospholipides qui composent la membrane des vésicules sont des macromolécules de forme allongée, ayant la propriété de posséder une partie polaire **hydrophile** ("tête"), et une partie **hydrophobe** ("queue"), typiquement constituée d'une longue chaîne aliphatique. Ces molécules sont aussi dites **amphiphiles**. De nombreuses molécules possèdent cette propriété. On peut citer par exemple les savons ou détergents, les amphiphiles discostiques [73, 110] (le cœur de ces molécules présentant un caractère hydrophobe, et la périphérie un caractère hydrophile). Mais les plus communes du point de vue biologique sont les lipides (glycolipides ou phospholipides, selon la nature du groupement

1. De telles structures sont obtenues par cisaillement d'une phase lamellaire [177].

polaire de tête). De telles molécules sont représentées sur la figure 1.1 et sont communément utilisées pour la synthèse des vésicules [1].

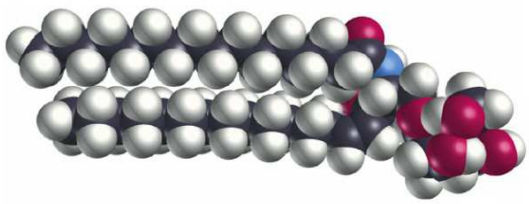


FIG. 1.1 – *Représentation spatiale complète de la molécule de glycolipide $C_{40}H_{72}O_8N$. On distingue nettement les deux queues carbonées hydrophobes ainsi que la partie hydrophile, ou tête polaire, contenant de l'oxygène (en rouge) et de l'azote (en bleu). Source : http://www.avantilipids.com/Liposomes.asp*

Quand elles sont placées en solution dans un solvant polaire tel que l'eau, l'hydrophobicité des radicaux carbonés conduit les molécules à s'assembler en structures de tailles et morphologies variables [64]. Ces structures tendent toutes à regrouper les chaînes carbonées en les séparant du solvant polaire par les têtes hydrophiles. Les liaisons entre ces molécules n'étant pas de nature covalente, l'agitation thermique va autoriser le passage d'un type de morphologie à l'autre. Par ailleurs, la forme des aggrégats obtenus dépend également de la force de l'interaction hydrophile avec le solvant, et donc du degrès de salinité de la solution. Enfin, et c'est sans doute le plus important, le rapport d'aspect des molécules amphiphiles en présence va notablement conditionner la morphologie finale des aggrégats. Ce rapport d'aspect μ est un nombre sans dimension défini par $\mu = V/(Sl)$ avec V le volume occupé par la chaîne, l sa longueur et S la surface de la tête. Il est possible de relier ces paramètres à la composition chimique des molécules (notamment au nombre d'atomes de carbone dans la chaîne) grâce aux formules empiriques de TANFORD [79]. Parmi les structures fréquemment observées, on peut citer les micelles (sphériques et cylindriques), les phases lamellaires, et bien entendu les vésicules. Nous avons schématisé sur la figure 1.2 les différents types de structures attendues en principe pour un facteur de forme donné.

A l'intérieur des structures mésoscopiques, les phospholipides ne sont pas véritablement liés entre eux, mais plutôt stabilisés au sens physique du terme : l'énergie libre totale du système est abaissée par la formation des structures. Ainsi les structures formées peuvent-elles être assimilées à des cristaux liquides **lyotropes** [110, 114] dans lesquels les molécules peuvent librement diffuser. Plus précisément, les lipides dont il a été question jusqu'ici se comportent comme un fluide bidimensionnel au-delà d'une température critique T_C qui est en général inférieure à la température ambiante. Le coefficient de diffusion de molécules de spectrines liées à la membrane d'une vésicule multilamellaire de D.M.P.C. (*DiMyristoylPhosphatidylCholine*) passe par exemple de

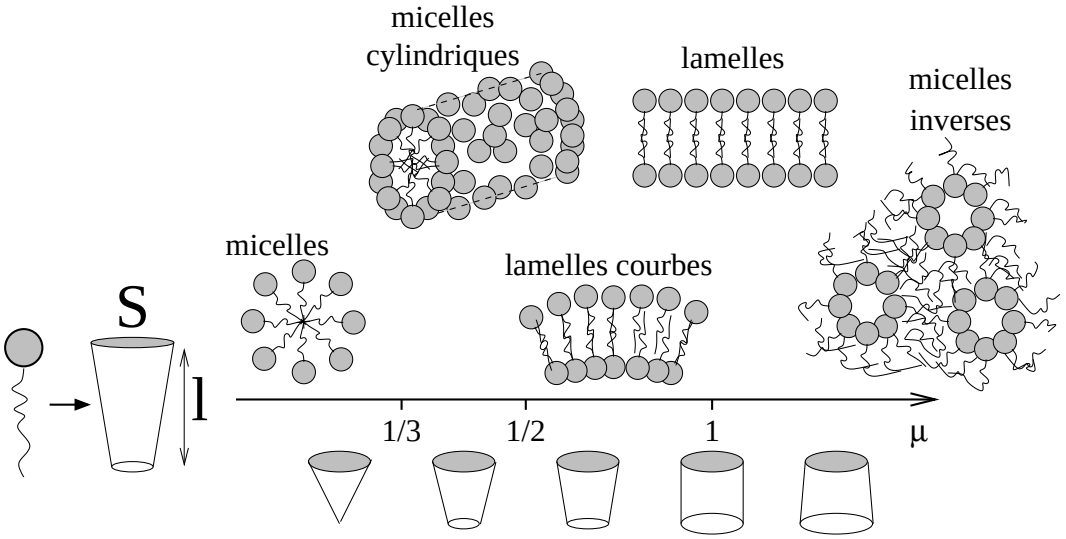


FIG. 1.2 – *Facteur de forme et structure résultante.*

$10^{-1}\mu m^2/s$ à 14 $°C$ à 10 $\mu m^2/s$ à 22 $°C$ [111]. Dans cet intervalle, le comportement de la membrane lipidique a été radicalement modifié. En dessous de cette température, les lipides sont assimilables à un gel, c'est-à-dire une phase amorphe mais figée, alors qu'au dessus, ils sont plutôt semblables à un liquide bidimensionnel. Pour cette raison T_C est souvent appelée **température de transition vitreuse**. Pour les lipides utilisés dans la synthèse des vésicules (D.O.P.C. et lécithine essentiellement), cette température est respectivement de l'ordre de -15 à -7 $°C$ et de -22 $°C$ [1]. Notons également que ce type de transition peut être mise en évidence par le biais de simulations de dynamique moléculaire [72]. Nous verrons que cette propriété n'est pas sans conséquence sur la dynamique des vésicules sous cisaillement.

Ainsi les vésicules résultent-elles d'une organisation hiérarchique des molécules de phospholipides en une membrane fermée (voir figure 1.3). Naturellement, dans le cadre d'une description mécanique de ces objets, il n'est pas question de tenir compte de la structure précise des lipides membranaires, ni même de leur organisation à l'intérieur de la membrane. Nous allons voir maintenant quelles sont les propriétés mécaniques de la membrane, à une échelle mésoscopique.

1.1.2 Les différents modes de déformation et leurs importances relatives

Toute déformation de la membrane peut, en dernière analyse, être décomposée suivant trois modes principaux [70] : une **déformation à surface constante** par cisaillement, une **déformation isotrope** par élongation

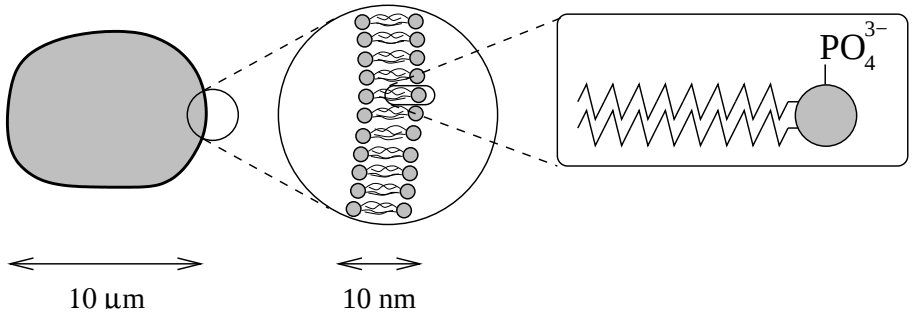


FIG. 1.3 – *Structure hiérarchique des vésicules de phospholipides.*

et compression et enfin une **déformation normale au plan** par courbure, ainsi que nous l'avons représenté sur la figure 1.4. Nous allons passer en revue ces trois modes de déformation afin de comparer leur importance relative.

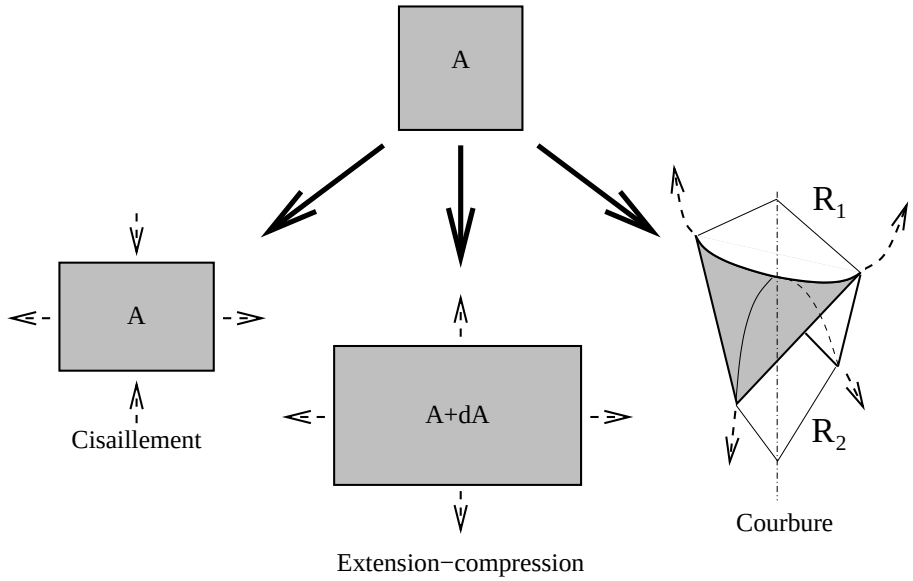


FIG. 1.4 – *Les trois modes de déformations possibles pour une membrane: cisaillement, extension-compression et courbure (d'après [48])*

Mode de cisaillement

Dans le cas d'une membrane fluide, il n'y a pas d'énergie emmagasinée lors d'une déformation par cisaillement, par définition. Nous n'en tiendrons donc pas compte dans notre description. Naturellement, il est possible de définir une viscosité de membrane qui sera associée à la dissipation d'énergie dans la bicouche, mais nous en reparlerons davantage dans la partie consacrée aux aspects dynamiques sous écoulement.

Mode d'extension et de compression

L'énergie d'interaction entre les lipides dans la membrane de la vésicule présente un minimum très marqué pour une distance donnée entre les têtes polaires. Cette distance est déterminée par la compétition entre les effets de répulsion d'une part, liés à la fois aux interactions électrostatiques de VAN DER WAALS au niveau des têtes et au confinement des chaînes (effet entropique), et les effets attractifs liés à l'hydrophobicité des chaînes d'autre part. De façon très générale, le coût énergétique **global** lié à une augmentation dA de l'aire d'équilibre A de l'élément de surface considéré pourra s'écrire de manière quadratique :

$$dE_{comp} = \frac{1}{2}\chi_e \left(\frac{dA}{A}\right)^2 \tag{1.1}$$

avec χ_e le **module de compressibilité**, homogène à une énergie par unité de surface. Il a pu être mesuré expérimentalement pour une bicouche de lécithines ($\chi \sim 0{,}1\ J.m^{-2}$) [89] et d'un mélange lécithine/cholestérol[2] ($\chi_e \sim 0{,}6\ J.m^{-2}$) [55]. Pour une vésicule ayant une taille typique R de 10 μm, ceci implique :

$$\frac{\chi_e R^2}{k_B T} \sim 10^{10}, \tag{1.2}$$

ce qui signifie que les extensions ou compressions (excitées thermiquement) de la membrane sont totalement négligeables. Nous verrons dans le prochain paragraphe que même dans les situations hors équilibre où d'autres contraintes peuvent intervenir, la surface de la vésicule devra être considérée comme constante.

Mode de courbure

Le dernier mode de déformation accessible pour un élément de surface est le mode de courbure, qui implique des déformations normales au plan, contrairement aux deux précédents qui étaient purement planaires. Dans le cas d'une ligne immergée dans un plan, un seul rayon de courbure algébrique est nécessaire (le choix du signe de cette quantité est une question de convention). Dans le cas des surfaces, on peut définir en chaque point deux rayons de courbures principaux R_1 et R_2, par exemple en approximant localement la surface par une forme quadratique (représentation de MONGE). Cette fois

2. Ces mesures sont effectuées à l'aide de micropipettes, qui permettent de localiser la vésicule et ainsi d'accéder au spectre de fluctuation de la membrane, et ainsi aux modules élastiques [140], par analyse d'image. Signalons également l'existence d'études similaires sur des membranes couplées à un réseau de spectrines (jouant le rôle du cytosquelette cellulaire) [62] ou sur des cellules vivantes [57].

encore, le signe est une question de convention et dépend du choix de l'orientation du vecteur normal à la surface[3]. En général, on introduit plutôt la notion de **courbure** définie simplement comme l'inverse du rayon de courbure :

$$c_{1,2} = \frac{1}{R_{1,2}}. \tag{1.3}$$

Ainsi, localement, toute surface pourra être décrite par une forme quadratique donnée par :

$$\mathcal{Q} = \begin{pmatrix} c_1 & 0 \\ 0 & c_2 \end{pmatrix}. \tag{1.4}$$

Une approche plus "topologique" consiste à assimiler cette forme à la différentielle de la "carte de GAUSS" de la surface considérée [27]. Cette application associe en effet à chaque point de la surface un point de la sphère unité : l'origine du vecteur normal à la surface en chaque point est ramenée en un point. Dans ce contexte, la différentielle de cette courbe peut être considérée cinématiquement comme la vitesse d'un point parcourant la trajectoire suivie par l'extrémité du vecteur unité sur la sphère : intuitivement, elle sera d'autant plus importante que la courbure locale sera forte.

Mais quelle que soit l'approche envisagée, deux invariants peuvent être construits à partir de la forme quadratique (1.4), la trace et le déterminant :

$$\begin{cases} Tr(\mathcal{Q}) = c_1 + c_2 \\ \\ Det(\mathcal{Q}) = c_1 c_2 \end{cases} \tag{1.5}$$

$H = Tr(\mathcal{Q})/2$ est la **courbure moyenne** de la surface au point considéré, et $G = Det(\mathcal{Q})$ est la **courbure gaussienne** . Un point sur la surface est alors dit :

- **elliptique** si $G > 0$. L'exemple canonique est la sphère qui est elliptique en chaque point.
- **parabolique** si $G = 0$ avec $H \neq 0$. Cette fois, l'exemple canonique est le cylindre, dont une et une seule des courbures principales est nulle en chaque point.
- **hyperbolique** si $G < 0$. La surface aura localement la forme d'un col.
- **plan** si $G = H = 0$.

Bien entendu, cette classification ne dépend pas du choix de l'orientation de la surface, et décrit donc une caractéristique **topologique** de la surface. En cherchant les invariants linéaires et quadratiques **indépendants** (c'est-à-dire inchangés par toute permutation entre c_1 et c_2), on obtient H (linéaire),

3. Dans la suite de ce document, nous avons orienté le vecteur normal vers le centre de courbure de la surface : la courbure est donc négative pour une sphère.

H^2 et G (quadratiques) [140]. Ainsi, le coût énergétique associé à la courbure d'un élément de surface dA ne pourra être qu'une fonction de ces deux formes quadratiques et de la forme linéaire. Nous pouvons par exemple écrire :

$$dE_{courb} = \frac{\kappa}{2} H^2 - \kappa c_0 H + \bar{\kappa} G. \tag{1.6}$$

La signification des préfacteurs est triviale, ainsi que le choix des signes. En effet, il est alors facile de ré-écrire cette expression de la façon suivante :

$$dE_{courb} = \frac{\kappa}{2}(c_1 + c_2 - c_0)^2 + \bar{\kappa} c_1 c_2. \tag{1.7}$$

κ est le **module de courbure moyenne** et $\bar{\kappa}$ le **module de courbure gaussienne**. Tous les deux sont homogènes à une énergie. κ est toujours positif pour de simples raisons de stabilité alors que $\bar{\kappa}$ peut éventuellement être négatif [71][4]. En général, et c'est le parti que nous allons adopter dans la suite de ce travail, ces modules sont supposés constants : ils traduisent une propriété intrinsèque de la membrane. Signalons cependant que certaines études expérimentales avec micropipettes révèlent une dépendance de κ avec la contrainte appliquée : dans le cas étudié par les auteurs, il s'agit d'un écoulement oscillant de fréquence $\dot{\gamma}$ qui provoque une réduction des fluctuations thermiques. A partir du spectre de ces fluctuations, il est possible de déterminer un module de courbure effectif :

$$\kappa = \frac{\kappa_c}{1 + \tau_0 \dot{\gamma}}, \tag{1.8}$$

avec τ_0 un paramètre ajustable de l'ordre de la centaine de secondes (soit deux ordres de grandeur au dessus du temps de relaxation typique des modes de courbure !) et $\kappa_c \sim 22\ k_B T$ [56].

Enfin, c_0 est la **courbure spontanée** de la membrane, c'est-à-dire la courbure adoptée spontanément par la bicouche en l'absence de toute contrainte extérieure. Ce terme est directement lié à l'asymétrie de la membrane, et peut être localement affecté par l'adsorption de protéines [48]. L'énergie totale associée au mode de courbure peut donc s'écrire comme l'intégrale sur toute la surface A de (1.7) :

$$E_{courb} = \int_A \frac{\kappa}{2}(c_1 + c_2 - c_0)^2 dA + \int_A \bar{\kappa} G dA. \tag{1.9}$$

Si les modules de courbure sont constants, ce qui est le cas si la membrane est homogène, alors nous obtenons l'énergie libre d'Helfrich [70] :

$$E_{courb} = \frac{\kappa}{2} \int_A (c_1 + c_2 - c_0)^2 dA + \bar{\kappa} \int_A G dA. \tag{1.10}$$

4. Un $\bar{\kappa}$ négatif favorise d'ailleurs la formation de phase "éponge", en tout point hyperbolique.

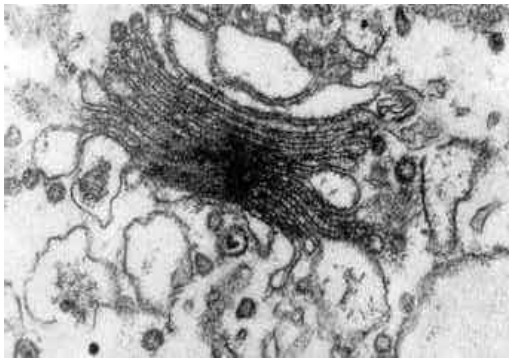



FIG. 1.5 – *A gauche : structure de la phase oignon révélée en microsocopie électronique (d'après http://www.crpp.u-bordeaux.fr). A droite : l'appareil de Golgi, d'après http://cell.sio2.be/importexport/5.php: les vésicules sont clairement visibles au-dessus des réticulations caractéristiques.*

La courbure gaussienne joue un rôle crucial pour décrire les réorganisations topologiques des surfaces, comme nous avons eu l'occasion de le voir dans la partie consacrée à la rupture des gouttes viscoélastiques. Dans le cas des vésicules, les changements topologiques peuvent avoir lieu quand deux vésicules fusionnent ou au moment de la fission [103]. On parle en général de bourgeonnement ou de vésiculation pour désigner ce phénomène qui peut être fréquemment rencontré dans l'organisme au niveau de l'appareil de GOLGI (voir figure 1.5), au cœur des cellules. La fission d'une vésicule en une vésicule "fille" et une vésicule "mère" implique l'apparition d'un col au niveau du bourgeonnement : à cet endroit, la courbure gaussienne est négative. Toutefois, d'un point de vue purement énergétique, en l'absence de réorganisations topologiques (comme ce sera le cas dans les études qui vont suivre), ce terme ne joue aucun rôle, en tout cas pour les membranes homogènes. En effet, un théorème célèbre de topologie (dit de GAUSS-BONNET) [27] stipule que l'intégrale de la courbure gaussienne sur une surface est proportionnelle à la caractéristique d'EULER-POINCARÉ de cette surface $\xi(s)$ [5] :

$$\int_A G dA = 2\pi\xi(A). \tag{1.11}$$

Dès lors, le second terme de (1.10) est une constante, et on peut alors

5. Ce nombre est construit à partir d'une triangulation de la surface : $\xi(A) = F - E + V$ avec F le nombre de triangles, E le nombre d'arrêtes et V le nombre de vortex. On peut montrer que ce nombre est indépendant de la triangulation adoptée, et peut donc être considéré comme un invariant topologique de la surface. Le **genre topologique** g d'une surface est un autre invariant construit à partir de $\xi(A)$: $g = (2 - \xi(A))/2$. Il vaut 0 pour la sphère, 1 pour le tore, etc... Si la surface est définie comme la réunion de deux sphères sans intersection, le genre topologique sera alors égal à -1, etc...

redéfinir l'énergie d'HELFRICH comme :

$$E_{courb} = \frac{\kappa}{2} \int_A (c_1 + c2 - c_0)^2 dA. \tag{1.12}$$

Insistons encore une fois sur le fait que ce raisonnement ne tient plus si nous considèrons l'expression plus générale (1.9), en particulier pour des membranes inhomogènes. Enfin, dans la plupart des cas, la membrane étant symétrique, la courbure spontanée c_0 est nulle, et on arrive donc à l'expression finale suivante, que nous avons utilisée tout au long de ce travail :

$$E_{courb} = \frac{\kappa}{2} \int_A (c_1 + c_2)^2 dA. \tag{1.13}$$

Un seul paramètre κ est donc nécessaire pour décrire ce mode de déformations. Les valeurs typiques de ce paramètre sont de l'ordre d'une dizaine de $k_B T$ [6].

Fluctuations thermiques

Enfin, nous pourrions inclure des effets de fluctuations thermiques au niveau de la membrane [145]. Certains travaux théoriques prévoient en effet une augmentation de la déformation des vésicules sous cisaillement, en présence de fluctuations [145]. Ces fluctuations sont nettement visibles à l'équilibre et peuvent d'ailleurs permettre d'accéder aux valeurs des modules élastiques de la membrane [56, 62, 140]. Néanmoins, des études récentes ont montré que les fluctuations de membranes sont supprimées par un écoulement de cisaillement oscillant [56]. Dans un premier temps donc, il était raisonnable de négliger cet effet.

1.1.3 Lois de conservation

Compte-tenu de la discussion précédente sur le mode de déformation par extension, et à partir des valeurs communément admises pour les tensions de rupture Σ_{lyse} d'une vésicule, qui sont de l'ordre de $10^{-3} J.m^{-2}$, on peut estimer la variation de surface relative maximale que peut supporter une vésicule avant de rompre [139] :

$$\frac{dA_{max}}{A} \sim \frac{\Sigma_{lyse}}{\chi_e} \sim 1\%. \tag{1.14}$$

Il est intéressant de remarquer que ce critère empirique peut se rapprocher de celui de LINDEMAN utilisé pour la fusion des solides : ce critère stipule en effet que la fusion commence quand l'amplitude des fluctuations thermiques d'un

6. Le simple fait de pouvoir observer des fluctuations normales à la surface sur des vésicules implique nécessairement que l'énergie typique associée à ces déformations doit être du même ordre de grandeur que l'énergie thermique.

atome dans le solide avoisine les 10 % (par rapport à la maille du réseau). Ramené à une surface, on retrouve bien le % obtenu pour les membranes. De plus, au regard de la très faible solubilité des molécules lipidiques dans les solvants aqueux, on peut affirmer tout d'abord que la membrane se comporte comme un **liquide bidimensionnel incompressible**. Il s'agit là d'une contrainte locale assez forte. En effet, si on se place dans une situation hors équilibre, on peut chercher à comparer la contrainte appliquée par le liquide extérieur, donnée par $\eta\dot{\gamma}$, avec η la viscosité du liquide (typiquement de l'ordre de 10^{-4} $Pa.s$) et $\dot{\gamma} \sim 100$ Hz la fréquence de sollicitation imposée, à la résistivité de la membrane par extension, donnée par χ_e/R, avec $R \sim 10$ μm la taille de la vésicule. On obtient alors un nombre sans dimension de l'ordre de 10^{-6}, ce qui signifie que dans les conditions usuelles de manipulation, la membrane de la vésicule sera bien incompressible.

La deuxième quantité conservée est le volume de la vésicule. La perméabilité de la membrane est effectivement totalement négligeable pour les macromolécules présentes en solution (dextrose, sucrose, etc...), mais il n'en est pas de même pour les molécules d'eau. Il est intéressant de comparer l'ordre de grandeur des pressions **osmotiques** qui vont apparaître au niveau de la membrane du fait de cette perméabilité sélective : pour une différence relative de concentration $\Delta c/c$ de l'ordre du % entre l'intérieur et l'extérieur de la vésicule, avec une osmolarité physiologique c de l'ordre de 50 $mMol/L$ [26], on arrive à une contrainte typique de $P_{osm} \sim \Delta cRT \sim 1000$ Pa à température ambiante (avec R la constante des gaz parfaits). En pratique, cette pression très importante sera utilisée pour gonfler ou dégonfler une vésicule. Si la perméabilité de l'eau est notée P_w (par exemple, on a $P_w \sim 10^{-6} m.s^{-1}$ pour les membranes de phospholipides [26]), on peut écrire :

$$\frac{dV}{dt} \sim P_w A \delta P \frac{V_m}{RT} \tag{1.15}$$

avec δP la différence de pression entre les deux volumes séparés par la membrane et V_m le volume molaire de l'eau. Pour une vésicule en situation de choc osmotique, la différence de pression que nous venons d'évaluer nous donne un temps de perméation caractéristique de l'ordre du quart d'heure, ce qui est typiquement le temps nécessaire au dégonflement d'une vésicule.

A l'inverse, en l'absence de déséquilibre osmotique, la contrainte δP qui sera susceptible de provoquer des changements de volume est liée à la courbure de la membrane. Avec un module κ de l'ordre de 10 $k_B T$, on arrive à $\delta P \sim \kappa/\rho^3 \sim$ 0,01 Pa (avec $\rho \sim 1\mu m$ la valeur typique des rayons de courbure rencontrés sur une vésicule géante). Les temps associés seront donc beaucoup plus longs, et donc totalement négligeables sur la durée de manipulation de ces objets. La membrane sera donc totalement imperméable, et au même titre que la surface, le volume devra être considéré comme une quantité conservée.

On peut ainsi construire un paramètre sans dimension τ_{3D}, appelé **taux de**

dégonflement qui est une quantité caractéristique de la vésicule. Une vésicule initialement sphérique et de volume V_s plongée dans un milieu d'osmolarité plus forte va se dégonfler progressivement à surface constante. Le rapport entre ce volume V et le volume initial de la vésicule est donné par τ_{3D}, et peut s'écrire :

$$\tau_{3D} = \frac{V}{V_s} = \frac{6\sqrt{\pi}V}{A^{3/2}}. \tag{1.16}$$

Naturellement, ce nombre est inférieur à 1 pour une vésicule dégonflée (il vaut exactement 1 pour une sphère) [7].

Pour conclure ce paragraphe, il convient donc d'écrire l'énergie totale associée à la membrane :

$$E^{3D}_{mem} = \int_A \left(\frac{\kappa}{2}(c_1 + c_2)^2 + \zeta\right) dA + \int_V P dV. \tag{1.17}$$

P est un paramètre qui s'ajuste au cours de la dynamique. La dérivation fonctionnelle de ce terme donne très simplement la contribution de pression $-\nabla P$ de l'équation de STOKES (ou NAVIER-STOKES dans le cas général). Ce terme, rappelons-le, garantit l'incompressibilité du liquide, exprimée par $\nabla.\mathbf{v} = 0$. ζ quant à lui est un multiplicateur de LAGRANGE local qui assure la conservation de la surface de la vésicule. Ce terme est associé à la conservation locale de l'aire de la membrane, qui se traduit par $\nabla_{2D}.\mathbf{v}_m = 0$, avec $\mathbf{v}_m$ la vitesse des points de la membrane.

Pour des raisons de temps de calcul déjà évoquées dans le cas des gouttes, nous allons nous restreindre au cas bidimensionnel [8]. Mathématiquement, cette divergence nulle se traduit alors par une équation du type :

$$\mathbf{t}.\frac{\partial \mathbf{v}_m}{\partial s} = \frac{\partial \mathbf{v}_m.\mathbf{t}}{\partial s} - c\mathbf{v}_m.\mathbf{n} = 0 \tag{1.18}$$

avec $\mathbf{v}$ la vitesse le long de l'interface et c la courbure locale. Nous verrons dans le prochain paragraphe comment écrire l'équation dynamique associée à ce paramètre.

On obtient facilement l'expression adaptée de l'énergie libre en posant une des deux courbures égale à 0 (ce qui revient à dire que le rayon de courbure associé est infini : nous travaillerons alors avec une vésicule "tubulaire", invariante par translation dans une direction d'espace). Dès lors, l'énergie d'Helfrich devient une énergie par unité de longueur et s'écrit :

$$E^{2D}_{mem} = \int_L \left(\frac{\kappa}{2}c^2 + \zeta(s)\right) ds \tag{1.19}$$

7. Pour les globules rouges, on utilise parfois $\tau_{3D}^{2/3}$

8. Il faut bien noter que notre problème est incompatible avec l'hypothèse d'axisymétrie que nous avons utilisée dans le cas des gouttes : ici, l'écoulement imposé sera un écoulement de cisaillement, donc non-axisymétrique.

Cette fois, ce sont la surface A et le périmètre L qui sont des quantités conservées. Travailler en deux dimensions ne devrait pas affecter qualitativement les résultats. Quantitativement bien sûr, il convient d'être plus prudent, en particulier pour les problèmes de force de portance que nous aborderons dans le dernier paragraphe de ce chapitre. En effet, nous verrons alors que la force de portance est essentiellement déterminée par l'écoulement entre la vésicule et la paroi, écoulement dont le profil peut être radicalement différent à deux dimensions ou à trois. Le taux de dégonflement s'écrit alors de la façon suivante:

$$\tau_{2D} = \frac{4\pi S}{L^2} \tag{1.20}$$

avec S la surface de la vésicule (l'équivalent du volume à 3 dimensions) et L son périmètre.

Enfin, nous voulons conclure cette partie en abordant succintement le problème de la dissipation d'énergie dans la membrane. Cette dissipation peut se produire de deux façons. Tout d'abord, par le biais du glissement relatif des deux monocouches de phospholipides. Un tel effet, s'il était important, aurait une conséquence importante sur les conditions aux limites pour la vitesse sur l'interface, qui pourrait se traduire par exemple par un glissement effectif. Nous n'en avons pas tenu compte ici, compte-tenu des très fortes viscosités mesurées dans la bicouche. Il est par ailleurs possible de définir et de mesurer une viscosité dans le plan des membranes de lipides, ce qui implique l'existence d'une dissipation d'énergie plus ou moins importante (voir par exemple [47]: le principe consiste à mesurer la vitesse de dérive sous son propre poids d'une bille fixée à la membrane d'une vésicule). Dans le cadre d'une étude dynamique préliminaire, cet effet peut être intégré de façon satisfaisante comme un paramètre de renormalisation de la viscosité intérieure du fluide (voir [85] et chapitre suivant). Par contre, des études analytiques ont montré que ce paramètre pouvait affecter le comportement de **capsules**[9] sous cisaillement, et plus particulièrement l'élongation maximale à un taux de cisaillement donné [10]. Ce phénomène a d'ailleurs pu être mis en évidence expérimentalement [29]. A deux dimensions cependant, cette dissipation n'est plus définie[10].

1.1.4 Morphologies d'équilibre

Pour ce qui concerne les morphologies d'équilibre, le modèle d'HELFRICH est particulièrement adapté (l'un des grands succès de ce modèle est d'ailleurs

9. La déformation des capsules est essentiellement dominée par les modes élastiques.

10. Notons enfin que les cellules vivantes semblent posséder une rhéologie membranaire plus complexe: la mesure dynamique des coefficients d'amortissement et de retard (G' et G'') sur des cellules humaines montre en effet une dépendance non linéaire de ces paramètres avec la fréquence de sollicitation. Par ailleurs, certains auteurs incluent de tels effets dans la description mécanique de la membrane de capsules [120].

d'avoir été capable de reproduire la forme caractéristique discocyte des globules rouges, mais nous y reviendrons dans le paragraphe 3). En effet, ces morphologies peuvent être obtenues par simple minimisation de l'énergie libre, et le seul paramètre variable dans ce problème est alors le taux de dégonflement [144]. Le module de courbure est le seul paramètre qui puisse fixer une échelle d'énergie dans le système, il n'est donc pas pertinent pour l'étude des formes d'équilibre. Il faut toutefois signaler que des modèles plus sophistiqués permettent de reproduire des cas plus complexes [144], notamment les formes **échinocytes** [78, 107] ou en "étoiles de mer"[173] que l'on peut voir sur la figure 1.6. Ces modèles, dits ADE (pour "Area Difference Elasticity") tiennent compte par exemple des différences de concentrations lipidiques entre les deux couches de la membrane, différences qui se traduisent par l'apparition d'une courbure privilégiée, et donc d'une échelle de longueur supplémentaire dans le problème. Cette longueur va intervenir par exemple dans la taille et l'espacement des spicules caractéristiques de ces vésicules.

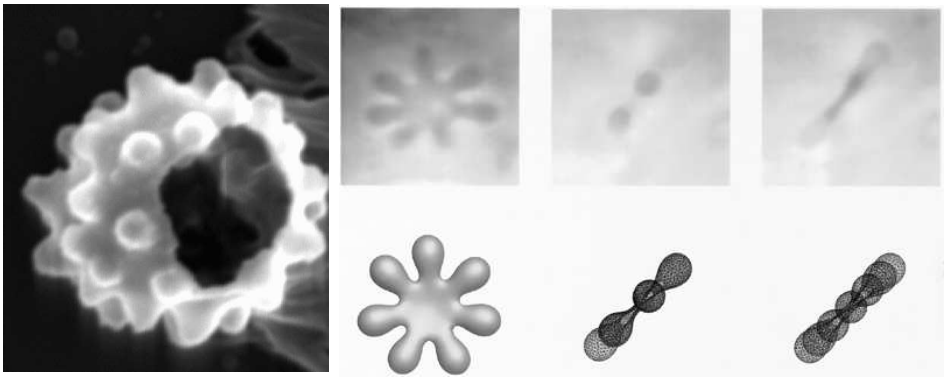


FIG. 1.6 – *Les formes échinocytes (à gauche) et en étoile de mer (à droite). D'après [173].*

Signalons cependant que les modèles ADE et d'HELFRICH (avec courbure spontanée c_0) sont équivalents à une transformation de LEGENDRE près. On s'attend donc à ce que les morphologies d'équilibre obtenues avec ces deux modèles soient les mêmes, bien que la nature et la position des transitions dans le diagramme de phase puissent dépendre du modèle.

1.2 Equations dynamiques

La force associée à l'énergie de membrane (1.19) est obtenue par simple dérivation fonctionnelle par rapport à une variation infinitésimale $\delta\mathbf{r}(s)$ de l'interface. La quantité obtenue sera une force par unité de surface. Ce calcul ne pose pas de problème particulier si on tient compte de la variation de la métrique qui résulte du déplacement (virtuel) de l'interface. En d'autres

termes, la paramétrisation de l'interface par l'abscisse curviligne s est affectée par l'opération [26]. Nous nous contenterons ici de donner le résultat :

$$\mathbf{f}_{mem}^{2D} = -\frac{\delta E_{mem}^{2D}}{\delta \mathbf{r}(s)} = -\kappa \left(\frac{\partial^2 c}{\partial s^2} + \frac{c^3}{2} \right) \mathbf{n} + \frac{\partial \zeta}{\partial s} \mathbf{t} + c\zeta \mathbf{n}. \tag{1.21}$$

Le premier terme normal est directement lié à l'énergie de courbure. Cette énergie étant une quantité purement géométrique, elle ne peut donner lieu à aucune force tangentielle : c'est un résultat trivial, puisqu'en effet, tout déplacement tangentiel des points d'une courbe ne fait que modifier leurs positions sans affecter la forme de la courbe, et donc sans modifier son énergie. Les deux derniers termes font intervenir le multiplicateur de LAGRANGE $\zeta(s)$. Le premier, tangentiel, traduit une sorte d'effet MARANGONI associé aux possibles variations de ce paramètre le long de l'interface. Le second, normal, est aisément reconnaissable, c'est l'analogue du terme de LAPLACE pour les gouttes.

Il est toutefois difficile de parler de tension de surface dans le cas des vésicules. En effet, si dans le cas des gouttes, cette quantité est une caractéristique de l'interface, indépendante des autres forces en présence (même si bien entendu elle peut varier avec la température par exemple : c'est d'ailleurs ce type de dépendance qui est à l'origine de l'effet MARANGONI), la situation est ici tout-à-fait différente : le paramètre $\zeta(s)$ s'adapte dynamiquement aux contraintes hydrodynamiques en présence.

La méthode la plus robuste consiste à résoudre implicitement l'équation (1.18) [120]. L'implémentation numérique est détaillée dans [176] : le principe consiste à évaluer le champ de vitesse à l'instant $t + dt$ sans la contrainte d'incompressibilité, pour pouvoir alors inverser (1.18) et calculer le nouveau champ ζ^{t+dt}. Naturellement, si la dynamique est suffisamment lente (au regard du pas de temps), cette formulation est idéale. Malgré tout, elle présente l'inconvénient d'une certaine lenteur de calcul. En pratique, une telle contrainte est difficile à respecter numériquement. Nous avons opté pour une description plus souple : le paramètre ζ obéira à une équation dynamique du type [18, 20] :

$$\frac{\mathcal{D}\zeta}{\mathcal{D}t} = T\mathbf{t}.\frac{\partial \mathbf{v}_m}{\partial s} \tag{1.22}$$

avec T un paramètre assimilable à une raideur, analogue au module élastique χ_e introduit dans le paragraphe précédent. Dans cette expression, $\mathcal{D}/\mathcal{D}t$ est la dérivée hydrodynamique. T va fixer l'échelle de temps[11] sur laquelle la contrainte va relaxer vers 0. Si cette constante a une valeur suffisamment élevée, c'est-à-dire si l'échelle de temps associée à cette relaxation est négligeable devant les autres échelles temporelles du problème, en particulier celles de l'écoulement, alors la contrainte sur l'incompressibilité locale sera bien

11. En effet, à partir de la viscosité η du liquide environnant et de la taille typique R de la vésicule, on peut construire un temps $\tau = \eta R/T$.

vérifiée. Il s'agit d'une méthode de relaxation analogue à celle que nous avons utilisée pour résoudre l'équation de STOKES.

En terme de champ de phase, il convient comme dans le cas des gouttes d'étendre la définition des paramètres dynamiques à tout l'espace, en particulier pour ζ. L'énergie interfaciale s'écrit alors :

$$E^{2D}_{mem}[\theta] = \frac{\kappa}{2}\iint c(\theta)^2 \frac{|\nabla\theta|}{2} d\mathbf{r} + \iint \zeta(\mathbf{r}) \frac{|\nabla\theta|}{2} d\mathbf{r} \tag{1.23}$$

Comme précédemment, la courbure pourra s'écrire $c[\theta] = -\nabla.\mathbf{n}$ avec $\mathbf{n} = \nabla\theta/|\nabla\theta|$. La force associée à cette énergie (1.23) sera alors donnée formellement par :

$$\mathbf{f}^{2D}_{mem}[\theta] = -\frac{\delta E^{2D}_{mem}[\theta]}{\delta\theta}\frac{\delta\theta}{\delta\mathbf{r}}. \tag{1.24}$$

Le calcul de la dérivée fonctionnelle en terme du champ de phase θ est détaillé dans l'annexe D. On montre assez facilement que l'on obtient:

$$\mathbf{f}^{2D}_{mem}[\theta] = \left[\left(-\kappa\left(\frac{c^3}{2} + \mathbf{t}.\nabla(\mathbf{t}.\nabla c)\right) - c\zeta\right)\mathbf{n} + (\mathbf{t}.\nabla\zeta)\,\mathbf{t}\right]\frac{|\nabla\theta|}{2} \tag{1.25}$$

Cette expression est totalement similaire à (1.21), si on remarque que $\mathbf{t}.\nabla$ est équivalent à ∂_s. Comme dans le cas des gouttes, l'équation de STOKES sera alors donnée par :

$$\epsilon_v \partial_t \mathbf{v} = \nabla.\boldsymbol{\sigma} - \nabla P + \mathbf{f}^{2D}_{mem} \tag{1.26}$$

avec la contrainte d'incompressibilité du fluide $\nabla.\mathbf{v} = 0$. $\boldsymbol{\sigma}$ est le tenseur des contraintes visqueuses défini classiquement désormais par :

$$\boldsymbol{\sigma} = \left(\eta_{ext}\frac{1+\theta}{2} + \eta_{int}\frac{1-\theta}{2}\right)\left(\nabla\mathbf{v} + \nabla\mathbf{v}^T\right) \tag{1.27}$$

L'équation (1.22) devient alors :

$$\partial_t\zeta = -\mathbf{v}.\nabla\zeta + T\mathbf{t}.(\mathbf{t}.\nabla)\mathbf{v} + \epsilon_\zeta\Delta\zeta \tag{1.28}$$

Le terme $\mathbf{t}.(\mathbf{t}.\nabla)\mathbf{v}$ représente le taux d'élongation local de la membrane, et se réduit bien à $\mathbf{t}.\partial_s\mathbf{v} = 0$ dans la limite "interface raide" (voir annexe B). Le terme diffusif $\epsilon_\zeta\Delta\zeta$ a été ajouté pour des raisons de stabilité numérique déjà évoquées pour les équations d'advection. Enfin, nous avons utilisé l'équation non-conservative pour la dynamique du champ de phase lui-même :

$$\partial_t\theta = -\mathbf{v}.\nabla\theta + \Gamma^{-1}\left(-\theta(1-\theta^2) + \epsilon^2\left(\Delta\theta + c(\theta)|\nabla\theta|\right)\right) \tag{1.29}$$

Les contraintes fortes d'incompressibilité au niveau de la membrane rendent très difficile l'utilisation du schéma conservatif. Toutefois, nous avons vérifié

Paramètre	Nom	Définition	Valeur typique
Re	Nombre de REYNOLDS	$\epsilon_v R^2\dot{\gamma}/\eta_{out}$	10^{-2}
Ca_κ	Nombre de courbure	$\eta_{ext}R^3\dot{\gamma}/\kappa$	0,5
Ca_T	Nombre de tension	$\eta_{ext}R\dot{\gamma}/T$	10^{-3}
λ	Rapport de viscosités	η_{int}/η_{ext}	1 à 20
τ_{2D}	Taux de dégonflement	$4\pi A/L^2$	0,7 à 1

TAB. 1.1 – *Paramètres sans dimension intervenant dans l'étude des vésicules isolées sous cisaillement.*

que la surface de la vésicule restait bien constante au cours des simulations, avec une variation toujours limitée à quelques %, y compris dans les cas instationnaires [12].

La dernière étape consiste à mettre les équations sous une forme adimensionnée. En choisissant $1/\dot{\gamma}$ comme temps caractéristique, avec $\dot{\gamma}$ une fréquence typique de l'écoulement imposé, et $R = \sqrt{S/\pi}$ comme longueur caractéristique, on obtient sans peine le système suivant :

$$\begin{cases} Re\ \partial_t \mathbf{v} = \nabla.\left[\left(\lambda\dfrac{1-\theta}{2}+\dfrac{1+\theta}{2}\right)\mathbf{D}\right] - \nabla P + \mathbf{f}^{2D}_{mem} \\ \nabla.\mathbf{v} = 0 \\ \partial_t\theta = -\mathbf{v}.\nabla\theta + \Gamma\left(-\theta(1-\theta^2)+\epsilon^2\left(\Delta\theta + c(\theta)|\nabla\theta|\right)\right) \\ \partial_t\zeta = -\mathbf{v}.\nabla\zeta + \mathbf{t}.(\mathbf{t}.\nabla)\mathbf{v} + \epsilon_\zeta\Delta\zeta \end{cases} \tag{1.30}$$

(ζ a été adimensionné par T). Le paramètre λ a la même définition que pour les gouttes : c'est le rapport de viscosités entre l'intérieur et l'extérieur de la vésicule. La force de membrane quant à elle s'écrit alors :

$$\mathbf{f}^{2D}_{mem} = \left[\left(-\frac{1}{Ca_\kappa}\left(\frac{c^3}{2}+\mathbf{t}.\nabla(\mathbf{t}.\nabla c)\right)\right)\mathbf{n} + \frac{1}{Ca_T}\left(c\zeta\mathbf{n}+\mathbf{t}.\nabla\zeta\right)\mathbf{t}\right]\frac{|\nabla\theta|}{2} \tag{1.31}$$

Dans le tableau 1.1, nous avons regroupé les différents paramètres sans dimension qui interviennent ainsi que les valeurs typiques que nous avons utilisées dans nos simulations. Nous ne reviendrons pas sur l'algorithme de résolution utilisé qui est rigoureusement le même que pour les gouttes newtoniennes bidimensionnelles.

La signification de ces paramètres est alors claire. Un faible nombre de REYNOLDS nous permet de négliger les effets inertiels. Le nombre de courbure compare la contrainte appliquée par l'écoulement externe $\eta_{ext}\dot{\gamma}$ à la déformabilité de la membrane κ/R^3 . Une grande valeur de Ca_κ correspond à une grande

déformabilité[12]. Nous nous sommes placés dans une situation intermédiaire en prenant $Ca_\kappa \sim 0{,}5$. Le chapitre 3 sera consacré à une discussion de ces valeurs numériques. De la même façon, Ca_T permet de contrôler les variations de périmètres de la vésicule. Les très faibles valeurs que nous avons choisies nous permettent de garantir une conservation de cette quantité à quelques pourcents (sauf peut-être dans les situations instationnaires les plus contraignantes comme nous allons le discuter dans le prochain paragraphe. Mais même dans ce cas, les écarts sont limités à des régimes transitoires intermédiaires courts, et ne devraient donc pas modifier radicalement la dynamique dans son ensemble.). Finalement, nous allons voir que les paramètres essentiels pour la dynamique sont le taux de dégonflement et le contraste de viscosité.

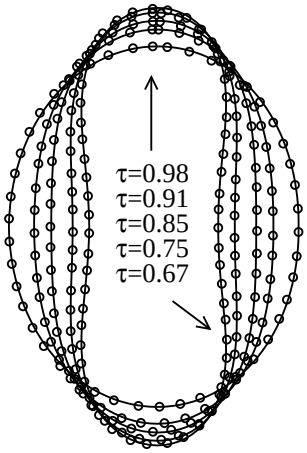


FIG. 1.7 – *Comparaison entre les profils d'équilibre obtenus par la méthode du champ de phase (traits pleins) et les profils obtenus par minimisation directe de l'énergie libre d'*HELFRICH *(points) avec contraintes de périmètre et de surface fixes.*

Un premier test de la méthode consiste naturellement à comparer les morphologies d'équilibre obtenues par résolution directe des équations précédentes en l'absence d'écoulement imposé avec les profils obtenus par minimisation de l'énergie libre d'HELFRICH. Nous avons représenté sur la figure 1.7 les formes ainsi obtenues, qui correspondent à l'isocontour $\theta = 0$ en terme de champ de phase. Ils sont en très bon accord, ce qui nous a encouragé à poursuivre nos études dans des situations hors équilibre[13].

12. Nous pourrions également construire une échelle de temps caractéristique de la relaxation des modes de courbure: $t_\kappa = \eta_{ext} R^3/\kappa$, et comparer cette échelle de temps à celle de l'écoulement, $1/\dot{\gamma}$. On obtiendrait le même nombre Ca_κ. Si on imagine une vésicule placée artificiellement loin de sa forme déquilibre, alors t_κ sera le temps typiquement nécessaire à la vésicule pour revenir à sa forme d'équilibre.

13. Notons également que ce type de profil d'équilibre a pu être obtenu à 3 dimensions.

1.3 Etude sous cisaillement

Dans un premier temps, nous allons nous focaliser sur la dynamique d'une vésicule isolée dans un écoulement de cisaillement simple. Un tel écoulement est caractérisé par une fréquence de cisaillement $\dot{\gamma}$ qui nous servira à définir l'échelle de temps caractéristique du système (voir paragraphe précédent). Le champ de vitesse à deux dimensions peut alors s'écrire :

$$\mathbf{v}_{cis} = \dot{\gamma}\mathbf{M}.\mathbf{r} = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} \tag{1.32}$$

La matrice $\mathbf{M}$ peut être décomposée de la façon suivante :

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 1/2 \\ 1/2 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & 1/2 \\ -1/2 & 0 \end{pmatrix} \tag{1.33}$$

Cette décomposition est schématisée sur la figure 1.8. L'écoulement de cisaillement apparaît ainsi comme la somme d'une composante élongationnelle dont l'axe principal est orienté à 45 degrès, et d'une composante rotationnelle de fréquence deux fois plus faible que la fréquence de cisaillement.

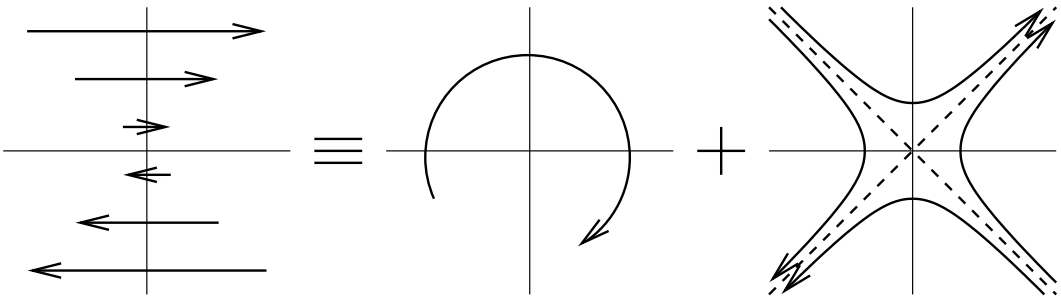


FIG. 1.8 – *Décomposition du cisaillement appliqué en un écoulement de rotation et un écoulement d'élongation à 45 degrès.*

Placée dans un tel écoulement, la vésicule va donc être sensible à un couple qui va avoir tendance à la faire basculer avec une fréquence de rotation de $\dot{\gamma}/2$, et à une élongation qui va avoir tendance à l'orienter face au cisaillement, à 45 degrès. L'importance relative de ces deux effets va dépendre à la fois du taux de dégonflement de la vésicule, et du rapport de viscosités. Intuitivement, une vésicule enfermant un liquide très visqueux va être plutôt sensible à la composante rotationnelle de l'écoulement, alors qu'une vésicule très peu visqueuse aura plutôt tendance à s'aligner sur l'axe principal d'élongation. On a donc une

En effet, les effets de taille finie ne devant pas avoir d'influence sur les états d'équilibre, il est possible de se limiter à des domaines de résolution très petits, ce qui rend les temps de calculs à nouveau raisonnables.

compétition *a priori* très riche entre des effets géométriques et d'autre effets physiques, liés à la dissipation visqueuse dans les liquides.

1.3.1 Le modèle de Keller & Skalak

L'approche analytique plus ellaborée qui nous servira de support pour interpréter nos résultats est celle de KELLER et SKALAK [85] qui ont analysé la dynamique d'ellipsoïdes rigides mais à la membrane fluide dans un écoulement de cisaillement. Le point de départ du calcul était un résultat de JEFFERY [80] qui cherchait à étendre les calculs d'EINSTEIN [54] pour les solutions diluées de particules ellipsoïdales rigides. Sans entrer dans les détails techniques de la résolution, il nous a semblé important d'en reprendre les grandes lignes afin d'en souligner les éventuels points d'achoppement avec notre modèle.

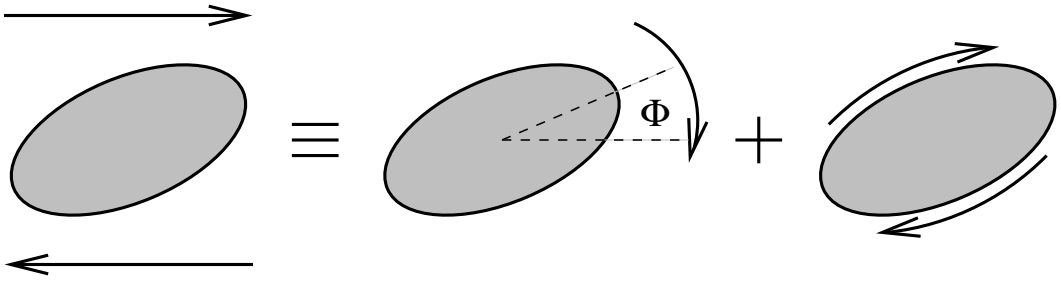


FIG. 1.9 – *Décomposition du mouvement de l'ellipsoïde en un mouvement de rotation en bloc ("tumbling") et un mouvement de rotation propre de l'interface ("tank treading"), à axe fixé.*

Le système considéré est un ellipsoïde tridimensionnel caractérisé par ses trois grands axes a_1, a_2 et a_3, et soumis à un écoulement de cisaillement bidimensionnel perpendiculairement à l'un de ses axes. Le nombre de REYNOLDS des écoulements considérés est suffisamment faible pour que l'approximation de STOKES soit justifiée. Le mouvement de l'ellipsoïde est alors décomposé en deux. Tout d'abord un mouvement de rotation d'ensemble, auquel se rajoute un mouvement de rotation propre de l'interface (voir figure 1.9). Ce dernier mouvement est essentiel, et prend le nom explicite de mouvement de "chenille de char" ("tank treading" en anglais). Il est la conséquence directe de la fluidité de l'interface. Les auteurs postulent une forme linéaire *a priori* pour cette rotation propre, qui est caractérisée par un seul paramètre ν qui est la fréquence de rotation :

$$\mathbf{v}_m = \nu \left(-\frac{a_1}{a_2} y, \frac{a_2}{a_1} x, 0 \right) \tag{1.34}$$

avec $\mathbf{v}_m$ la vitesse d'un point de la membrane. Un point délicat concerne l'incompressibilité de la membrane qui n'est pas respectée dans ce modèle

puisque le champ de vitesse proposé n'est pas compatible avec cette hypothèse majeure. Malgré tout, la complexité des équations est telle que seule une forme simple permet la résolution analytique de bout en bout. Signalons malgré tout que l'écart à l'incompressibilité est d'autant plus important que l'ellipsoïde s'écarte de la forme sphérique.

La conservation du moment cinétique permet d'exprimer l'équation dynamique pour l'angle d'inclinaison Φ de l'ellipsoïde. En l'absence d'inertie, ce principe se réduit à l'équilibre des couples exercés par le liquide extérieur sur l'ellipsoïde, par le mouvement de rotation d'ensemble et par la rotation propre de l'interface. Pour fermer cette équation, il reste à déterminer de façon autoconsistante la fréquence de rotation ν de l'interface, ce qui est fait en équilibrant l'énergie injectée sur l'interface par l'écoulement externe avec l'énergie dissipée par viscosité à l'intérieur de l'ellipsoïde[14]. Finalement, l'équation du mouvement de l'ellipsoïde est donnée par :

$$\dot{\Phi} = A + B\cos(2\Phi) \tag{1.35}$$

avec $A = -0{,}5$ dans notre système d'unités et B une fonction complexe des paramètres géométriques de l'objet et du rapport de viscosités : $B \equiv B(\{a_1,a_2,a_3\},\lambda)$. En d'autres termes, A traduit le couplage avec la composante rotationnelle de l'écoulement, et B avec sa composante élongationnelle. Si une solution stationnaire existe, alors nécessairement nous aurons :

$$\Phi = -\arccos\left(\frac{B}{A}\right) \tag{1.36}$$

Une telle expression n'a de sens que si B/A est compris entre -1 et 1, et ceci va dépendre à la fois de la géométrie de l'ellipsoïde et du rapport de viscosités. Si les paramètres du problème interdisent l'existence d'une telle solution, alors d'après (1.35), l'ellipsoïde sera soumis à un mouvement de rotation d'ensemble périodique, auquel bien sûr se superpose le mouvement de rotation propre de l'interface. Pour résumer, on peut ainsi dire qu'aux faibles rapports de viscosités, la dissipation interne va être suffisamment faible pour favoriser les mouvements stationnaires de type "chenille de char" : la vésicule va s'orienter face au cisaillement. En augmentant progressivement la viscosité interne, on s'attend à ce que les circulations à l'intérieur de la vésicule soient de plus en plus pénalisées. Dans ce cas, la vésicule sera de plus en plus sensible au couple de rotation global, et elle finira par basculer dans un mouvement périodique non stationnaire (souvent désigné par "tumbling" en anglais). Enfin, plus le taux de dégonflement sera faible, plus la dissipation interne sera importante. En effet, pour $\tau_{2D} = 1$, une rotation uniforme du liquide interne est possible,

14. C'est à ce niveau que la viscosité membranaire est prise en compte par l'introduction d'une viscosité effective pour le liquide interne, qui tient compte à la fois de la viscosité du fluide et de la membrane.

et n'occasionne aucune dissipation, quel que soit le rapport de viscosités. Plus nous nous éloignons de la forme circulaire par conséquent, plus la dissipation sera importante. On s'attend donc à ce que le rapport de viscosités critique soit une fonction croissante du taux de dégonflement (on peut même affirmer que ce rapport critique divergera pour $\tau_{2D} = 1$. En effet, cette valeur est singulière puisqu'alors on ne peut plus distinguer la rotation propre de la membrane du mouvement de bascule).

Tout l'intérêt du travail de KELLER & SKALAK réside justement dans l'expression analytique (complexe) qui relie le rapport de viscosités critique au-delà duquel la solution stationnaire disparaît, en fonction des paramètres géométriques. C'est avant tout cette prédiction que nous allons essayer de confronter aux simulations numériques. Une approche plus générale et moins lourde analytiquement a été proposée récemment pour répondre aux caractéristiques spécifiques des vésicules [135].

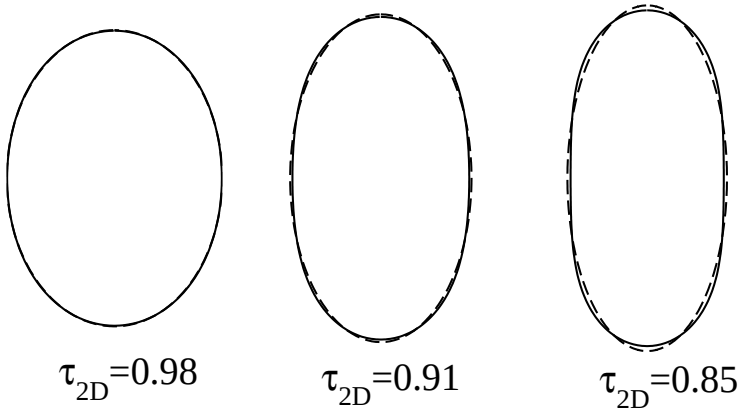


FIG. 1.10 – *Comparaison entre les morphologies d'équilibre et les ellipses de même surface et périmètre.*

Une dernière remarque s'impose : les résultats analytiques dont il a été fait mention ici sont relatifs à des ellipsoïdes, mais peuvent s'adapter à des ellipses, moyennant quelques calculs intermédiaires. Nous allons donc pouvoir confronter nos résultats directement avec les prédictions du modèle. Néanmoins, si les morphologies d'équilibre des vésicules peuvent être raisonnablement assimilées à des ellipses pour des taux de dégonflement proches de l'unité (voir figure 1.10), il n'en est plus de même pour $\tau_{2D} < 0{,}9$, typiquement (voir figure 1.7). On peut toutefois calculer les paramètres géométriques de l'ellipse correspondante (ayant le même périmètre et la même surface), mais il conviendra

de garder en mémoire que l'hypothèse de départ du modèle analytique ne sera plus vérifiée.

1.3.2 Etude numérique

Le mouvement stationnaire de rotation propre a pu être mis en évidence numériquement grâce à une approche de type "intégrale de frontière", à 3 dimensions [87]. Dans ce cas, le rapport de viscosités λ était fixé à 1, ce qui simplifie considérablement le traitement, puisque dans ce cas la relation entre la vitesse et les forces membranaires est totalement explicite (voir annexe). Néanmoins, la transition de bascule ne peut pas être observée dans ce cas. Expérimentalement, la rotation propre de vésicules en sédimentation au voisinage d'une paroi a pu être mise en évidence grâce à la présence de défauts sur la membrane, très nettement visibles au microscope [2].

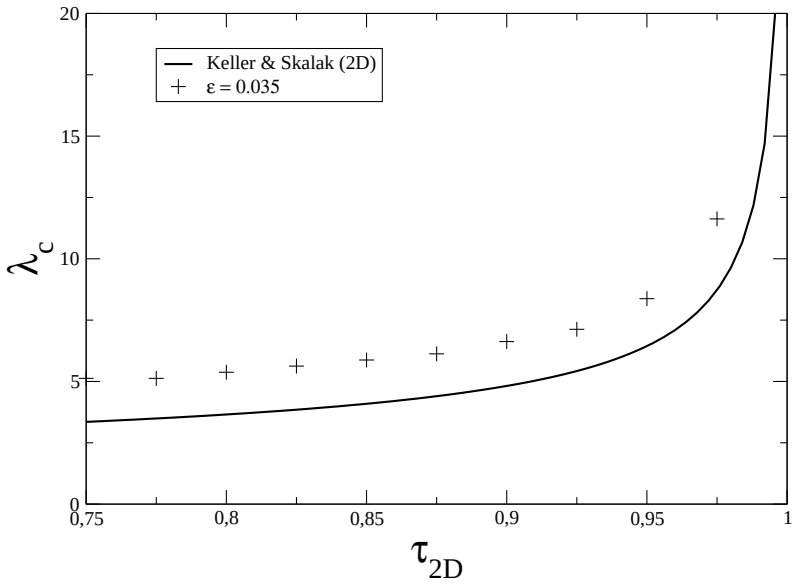


FIG. 1.11 – *Rapport de viscosités critique λ_c en fonction du taux de dégonflement. Comparaison avec le résultat analytique de* KELLER & SKALAK.

Nous avons donc commencé par explorer la dynamique de vésicules soumises à un cisaillement constant [12, 20]. Pour un taux de dégonflement donné, nous avons cherché le rapport de viscosités critique au-delà duquel la solution stationnaire disparaît, en utilisant une simple méthode dichotomique. Les

résultats, ainsi que la prédiction de KELLER & SKALAK, sont regroupés sur la figure 1.11.

Nous observons un bon accord qualitatif. On retrouve bien en effet un rapport de viscosités critique croissant avec le taux de dégonflement, et la divergence attendue pour $\tau_{2D} \to 1$ est bien amorcée. Néanmoins, un écart systématique semble être observé.

Face à ce genre de situation, deux hypothèses peuvent être émises. La première consiste à invoquer une imprécision du modèle, ce qui semblerait raisonnable compte-tenu des remarques qui ont été faites précédemment (écart à l'ellipticité aux faibles taux de dégonflement et non respect de l'incompressibilité de la membrane). Une autre approche consiste à reprendre les résultats numériques avec un regard critique. Dans notre simulation, deux paramètres essentiels interviennent. Le premier est la largeur ϵ du champ de phase, que nous avons fixée à 3,5% de la taille de la vésicule dans la simulation précédente, et le second concerne les effets de taille finie. Rappelons en effet que nous avons choisi de travailler avec des conditions aux limites périodiques, ce qui limite ces effets indésirables, mais ne les annule pas complétement. Le premier facteur est inhérent au modèle numérique utilisé, le second à la méthode de résolution.

La linéarité des équations de STOKES autorise l'utilisation du formalisme des fonctions de GREEN pour traiter ce problème. Nous avons donc pu comparer les deux approches. Le premier avantage des méthodes intégrales concerne l'épaisseur de l'interface, qui est nulle comme dans l'approche analytique de KELLER & SKALAK. Le second est lié aux conditions aux limites : le champ de vitesse créé par la vésicule est bien nul à l'infini. Enfin, la résolution est particulièrement rapide, y compris en présence d'un contraste de viscosités[15].

Pour quantifier les effets mentionnés ci-dessus, nous avons tout d'abord choisi de tester leur influence sur l'angle d'inclinaison d'une vésicule sous cisaillement, dans l'état stationnaire. Pour $\tau_{2D} = 0{,}8$ et $\lambda = 4$, nous sommes *a priori* en dessous du seuil de transition. L'angle Φ dépend manifestement linéairement de l'épaisseur du champ de phase (voir figure 1.12) , et la valeur extrapolée à $\epsilon = 0$ est donnée par $\Phi(\epsilon = 0) = 6.94$, qui est relativement proche de la valeur donnée par la méthode intégrale ($\Phi = 6.2$). Par contre, on voit bien que pour la valeur de ϵ utilisée initialement pour le calcul du rapport de viscosités critique surestime largement la valeur attendue (d'un facteur 1.5). Un tel comportement linéaire est tout-à-fait cohérent avec notre approche. Nous l'avons vu dans le chapitre consacré au champ de phase, un terme correctif a été introduit dans l'équation d'advection de θ pour supprimer les effets de ϵ jusqu'à l'ordre 1 inclus. Toutefois, une telle modification n'a pas été introduite dans l'équation de STOKES, qui dépend pourtant elle aussi de ϵ, par le biais de θ. Il est donc normal de voir ainsi apparaître une telle dépendance, même si nous n'avions pas anticipé son importance. Pour améliorer la précision de

15. Dans ce cas en effet, la vitesse n'est plus donnée que par une relation implicite, non locale.

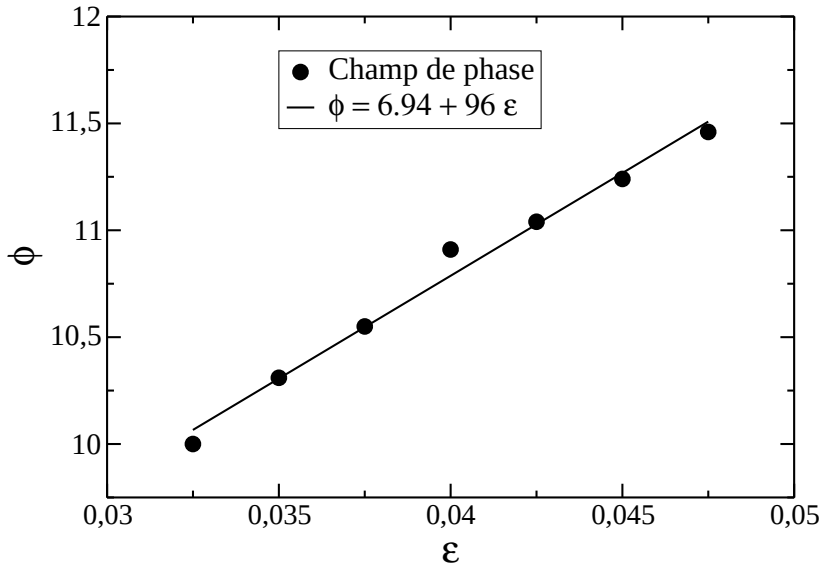


FIG. 1.12 – *Variation de* Φ *avec l'épaisseur* ϵ *du champ de phase. Régression linéaire.*

la méthode, il faudrait donc supprimer les termes d'ordre ϵ dans l'équation de STOKES également.

Nous l'avons dit, le second paramètre important est la taille du domaine de résolution pour la méthode du champ de phase. Nous avons fixé $\epsilon = 0{,}035$ et fait varier la taille du domaine de 8 à 20 fois la taille typique de la vésicule. Il aurait été intéressant d'effectuer cette étude pour différentes valeurs de ϵ, mais les temps de calcul deviennent vite prohibitifs. Pour les mêmes valeurs de paramètres que précédemment, nous avons mesuré l'angle d'équilibre en fonction du confinement, défini comme l'inverse de la taille L du domaine ($L^{-1} \to 0$ correspond ainsi à un confinement nul). Nous obtenons les résultats de la figure 1.13.

On voit que l'effet semble aller à l'encontre du résultat obtenu avec l'extrapolation vers une interface d'épaisseur nulle, et on peut s'attendre à une compensation partielle des deux effets.

De manière intéressante, si nous considérons le rapport de viscosité critique, nous constatons sur la figure 1.14 que celui ci reste insensible au confinement. Une explication probable consiste à remarquer que la transition correspond à un angle d'équilibre nul, dans lequel la perturbation de l'écoulement par la vésicule est faible. On peut donc penser que les effets de taille finie à ce niveau seront faibles également. Ainsi, pour obtenir la courbe de transition, il suffit

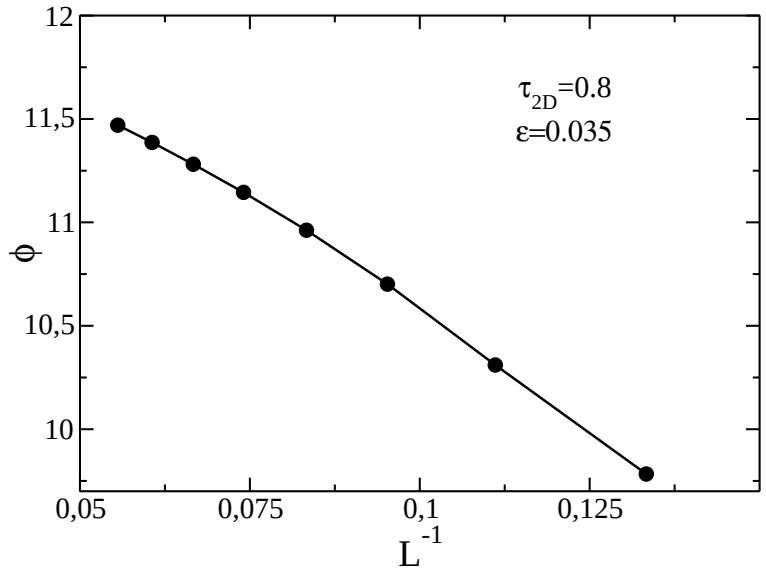


FIG. 1.13 – *Variation de* Φ *avec le confinement (champ de phase).*

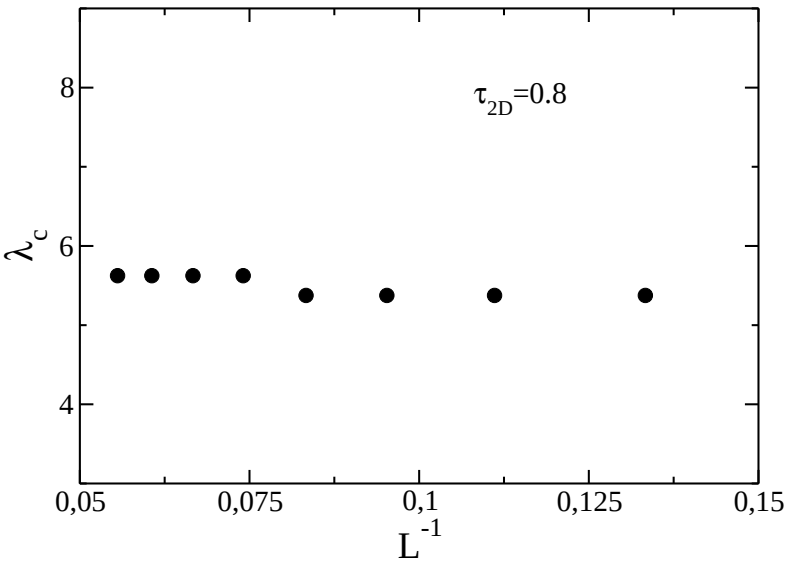


FIG. 1.14 – *Rapport de viscosités critique* λ_c *en fonction du confinement (champ de phase).*

de considérer l'influence de l'épaisseur de l'interface uniquement.

Nous avons donc adopté la stratégie suivante : pour chaque taux de dégonflement, nous avons calculé le rapport de viscosités critique avec deux valeurs de ϵ (0,035 et 0,047), puis nous avons utilisé une extrapolation linéaire pour obtenir le rapport de viscosités critique pour une interface d'épaisseur nulle. Nous obtenons les courbes de la figure 1.15. Nous voyons que les valeurs extrapolées du champ de phase sont en très bon accord avec les prédictions de la méthode intégrale, mais qu'un décalage systématique avec le modèle de Keller & Skalak subsiste.

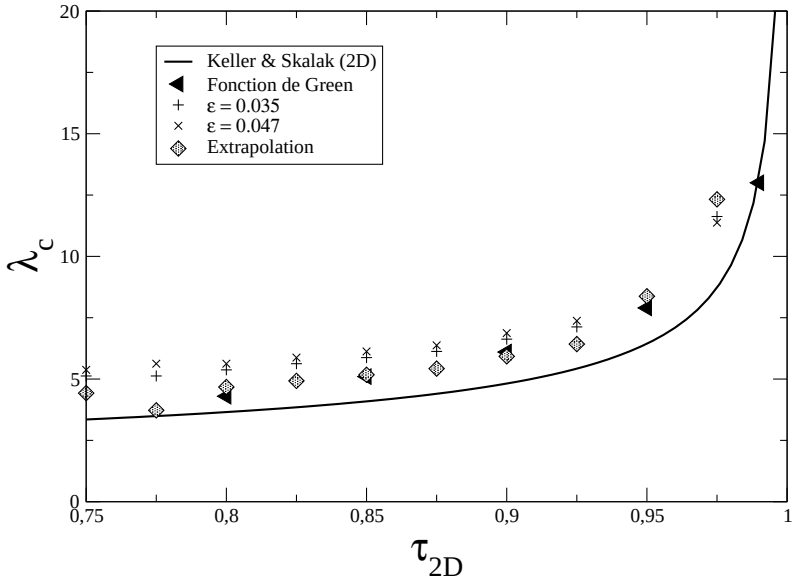


Fig. 1.15 – *Rapport de viscosités critique λ_c en fonction du taux de dégonflement, pour deux valeur de ϵ (3,5 % et 4,7 % de la taille de la vésicule). Comparaison avec le résultat analytique de Keller et Skalak.*

Le résultat le plus surprenant, confirmé cette fois à la fois par la méthode du champ de phase et par la méthode intégrale, concerne la valeur de cet écart, qui semble indépendant du taux de dégonflement. Nous pourrions nous attendre en effet à ce qu'il diminue quand τ_{2D} se rapproche de 1, puisqu'alors les morphologies des vésicules sont indiscernables des ellipses correspondantes. A notre avis, le principal effet à invoquer concerne le choix de la vitesse de rotation propre de l'interface. La prescription (1.34) de Keller & Skalak permet certes de mener intégralement le calcul, mais ne garantit pas l'incompressibilité de la membrane. Nous avons vérifié numériquement que cette contrainte était bien vérifiée dans nos deux approches numériques [12]. Par ailleurs, nous

avons vérifié que la surface interne de la vésicule était correctement conservée (avec des variations relatives inférieures au pourcent).

1.3.3 Effets du confinement entre deux parois rigides

Jusqu'à présent, nous n'avons considéré que le cas idéalisé d'une vésicule isolée soumise à un taux de cisaillement constant. Nous l'avons vu, les effets de taille finie n'ont pas une grande importance sur les seuils de transition, si les conditions aux limites sont périodiques. Malgré tout, pour nous rapprocher des situations expérimentales réelles, il nous faut modifier légèrement le système. Nous allons en effet confiner la vésicule entre deux plans rigides, en translation uniforme l'un par rapport à l'autre.

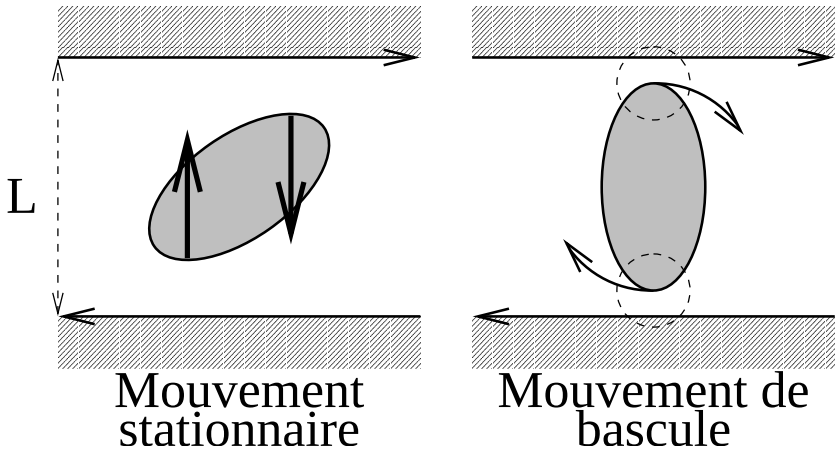


FIG. 1.16 – *Schéma du confinement. Dans la partie gauche, on voit que la force de portance liée à la présence de parois provoque l'apparition d'un couple opposé à celui dû au cisaillement. Sur la partie droite, on voit que le mouvement de bascule est lui aussi défavorisé par la présence de parois.*

Sans anticiper sur le prochain paragraphe, nous savons que la présence d'une paroi provoque l'apparition d'une force de portance qui tend à éloigner la vésicule du substrat ([26] et chapitre 2). Pour éviter l'apparition de dérives, nous plaçons la vésicule au centre du système : à cet endroit en effet, la force de portance est nulle par symétrie. Dans un premier temps, nous avons mesuré l'angle d'inclinaison Φ de la vésicule. Nous voyons sur la figure 1.17 que l'angle diminue au fur et à mesure que le confinement augmente. En effet, l'interaction avec le mur que nous venons d'évoquer, et que nous présenterons plus en détail dans le prochain paragraphe, provoque l'apparition d'un couple qui s'oppose à l'inclinaison de la vésicule (voir schéma 1.16).

Dans une situation non stationnaire de bascule, le même type d'effet va apparaître. On conçoit facilement qu'au-delà d'un certain confinement, la vésicule

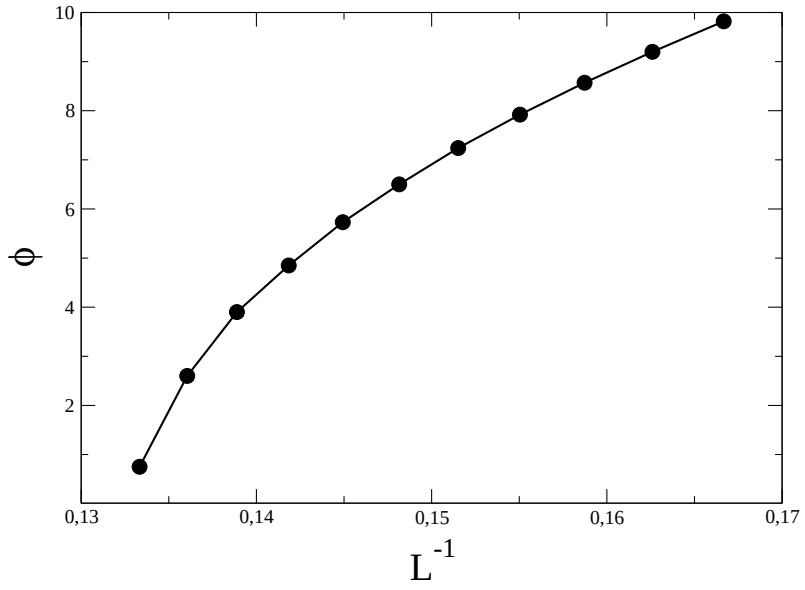


FIG. 1.17 – *Angle d'équilibre de la vésicule (τ_{2D}=0,7 et λ=10) en fonction du confinement.*

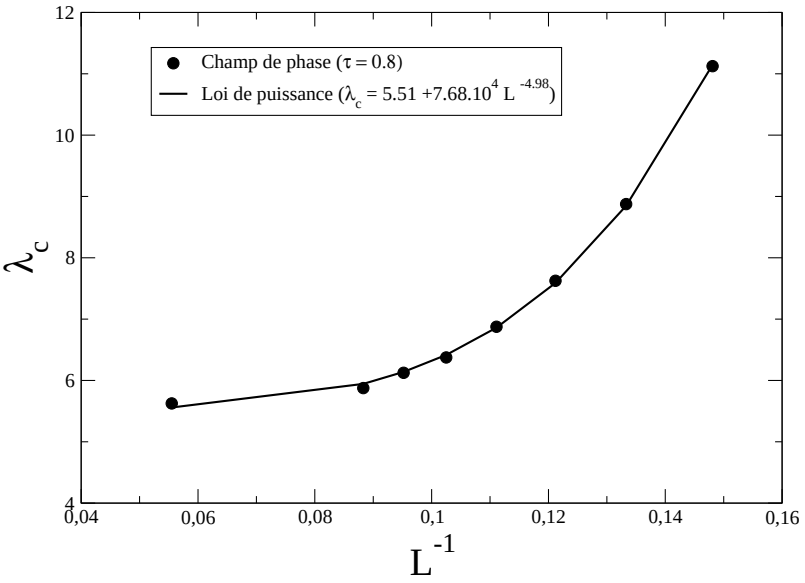


FIG. 1.18 – *Variation de λ_c avec le confinement. Nous avons travaillé ici avec τ_{2D}=0,8.*

n'ait plus la possibilité de tourner, sauf à provoquer des écoulements de cisaillement très pénalisants énergétiquement (voir schéma 1.16). Ce mouvement est donc clairement défavorisé par la géométrie du système, et on s'attend à ce que les seuils de transition soient augmentés à mesure que le confinement augmente. C'est bien ce que nous avons mesuré sur la figure 1.18. Sur cette courbe, nous avons ajusté les points issus de nos simulations par une loi de puissance qui nous permet d'extrapoler la valeur critique λ_c pour un confinement nul. Si les parois sont rejetées à l'infini, les effets liés au confinement devraient disparaître, et on devrait obtenir une valeur proche de celle que nous avions mesurée dans le paragraphe précédent. La valeur extrapolée est $\lambda_c = 5{,}5$ alors que nous avions trouvé 5,4 avec les conditions aux limites périodiques. L'accord est donc excellent, ce qui est un bon indicateur de la cohérence du modèle numérique, ainsi que de l'intérêt des conditions aux limites périodiques pour représenter un système infini.

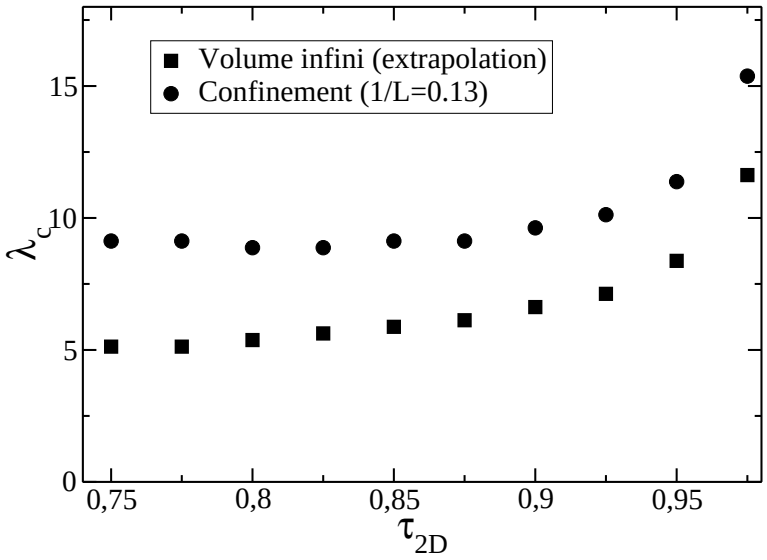


FIG. 1.19 – *Rapport de viscosités critique pour une situation confinée ($1/L \sim 0{,}13$) et sans confinement. Cette dernière courbe correspond à la courbe extrapolée de la figure 1.15.*

Finalement, nous présentons sur la figure 1.19 la variation du rapport de viscosités critique avec le taux de dégonflement, pour une valeur particulière du confinement. Nous avons travaillé avec $1/L \sim 0{,}13$, ce qui correspond à une distance entre les plaques huit fois supérieure à la taille de la vésicule. On voit que les effets sont très forts puisque les seuils sont presque multipliés par

deux pour les vésicules les plus déformées. Il ne faut pas oublier qu'à deux dimensions, la portée des interactions hydrodynamiques est logarithmique, et donc que les effets liés à la présence de conditions aux limites particulières dans le système ont une importance non négligeable, y compris à des distances importantes. En général, les difficultés numériques liées à cette divergence sont assez importantes, et nécessitent des traitements particuliers. L'introduction d'un nombre de REYNOLDS non nul dans nos simulations contribue d'ailleurs à limiter ces problèmes, en introduisant une sorte de correction inertielle aux équations de STOKES. Il serait donc intéressant de considérer le même système à 3 dimensions, car dans ce cas la portée des interactions hydrodynamiques décroit en $1/r$. Les temps de calculs prohibitifs liés à la méthode du champ de phase nous ont néanmoins empêché toute étude en ce sens. Les méthodes intégrales peuvent se montrer plus attractives dans le cas présent.

Nous venons de le voir rapidement, la présence d'interfaces rigides a une influence non négligeable sur la dynamique des vésicules. Le prochain paragraphe sera consacré à une étude plus systématique des effets de couplage avec un substrat déformable.

Chapitre 2

Force de portance au voisinage d'un substrat déformable

Dans ce paragraphe, nous allons nous focaliser sur les effets induits par la présence d'une paroi déformable sur la dynamique d'un cylindre rigide ou d'une vésicule[1]. Dans un premier temps, nous allons revenir sur le cas connu de la force de portance induite par la présence d'une paroi rigide à proximité d'un objet asymétrique. Puis nous nous attacherons à modéliser l'élasticité du substrat, en particulier en montrant que les équations de Lamé (qui relient les contraintes dans un corps élastique au champ de déformations de ce corps) retrouvent un caractère local dans la limite des substrats de faible épaisseur. Enfin, nous reviendrons à notre problème initial en considérant le cas d'un cylindre soumis à un cisaillement près du substrat déformable, puis nous étendrons notre étude au cas des vésicules.

Nous présenterons également un calcul analytique perturbatif qui nous a permis de mettre en évidence le caractère universel de la force de portance dans le cas du cylindre. Les calculs numériques que nous avons effectués étaient basés sur une approche de type champ de phase pour les étapes préliminaires. Les résultats définitifs ont fait appel à la technique des fonctions de Green, déjà évoquée dans le précédent paragraphe.

Comme nous l'avons mentionné au début du paragraphe d'introduction de cette partie, nous cherchons à modéliser ainsi le comportement dynamique de cellules sanguines en écoulement dans des capillaires, dont la paroi est tapissée d'une couche de gel déformable, le glycocalyx. La pertinence de notre modèle sera plus longuement discutée dans le prochain chapitre.

1. Nous verrons par la suite que nous avons adopté le modèle des vésicules pour simuler la dynamique du cylindre.

2.1 Symétrie des équations de Stokes

Nous allons étudier l'influence des propriétés de symétrie des équations de STOKES dans un domaine Ω délimité par une frontière $\partial\Omega$ invariante par l'opération $x \to -x$ (symétrie miroir). Un tel système peut être par exemple un cylindre soumis à un cisaillement au voisinage d'une paroi rigide (voir figure 2.1). Si les effets inertiels peuvent être négligés, la dynamique du fluide est déterminée par les équations de STOKES :

$$\begin{cases} \eta\Delta\mathbf{v}_0 - \nabla P_0 = \mathbf{0} \\ \nabla.\mathbf{v}_0 = 0 \\ \mathbf{v}_0(\mathbf{r} \in \partial\Omega) = \mathbf{u}_0(\mathbf{r}) \end{cases} \tag{2.1}$$

avec $\mathbf{u}_0(\mathbf{r})$ la vitesse sur la frontière $\partial\Omega$. L'hypothèse supplémentaire que nous allons faire concerne l'antisymétrie de cette vitesse, qui se traduit mathématiquement par :

$$\begin{cases} u_{0,x}(x,y,z) = u_{0,x}(-x,y,z) \\ u_{0,y}(x,y,z) = -u_{0,y}(-x,y,z) \end{cases} \tag{2.2}$$

Une réalisation pratique de ce système consiste à placer un cylindre sous cisaillement au voisinage d'une paroi rigide. Dans un écoulement de POISEUILLE par exemple, l'hypothèse précédente n'est pas vérifiée, et le raisonnement suivant ne s'applique pas. La pression quant à elle est nulle à l'infini. Nous allons appliquer deux transformations au système, qui laissent les équations de STOKES invariantes. La première consistera à transformer x en $-x$ (symétrie miroir), la seconde à changer t en $-t$, ce qui se traduit par un renversement des vitesses et des forces, dans un système suramorti.

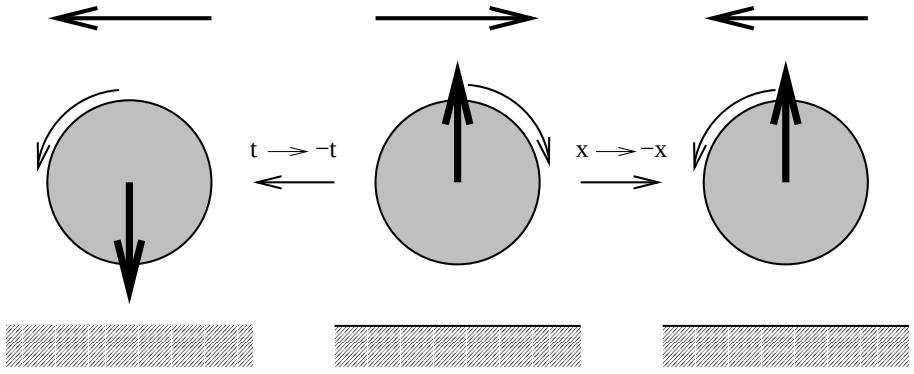


FIG. 2.1 – *Renversement du temps, symétrie miroir et force de portance.*

Le raisonnement est schématisé sur la figure 2.1. Imaginons qu'une force de portance répulsive existe dans le système (schéma central). Par renversement

du temps, nous obtenons une force orientée vers le bas (schéma de droite). Si maintenant nous considérons le système symétrique du premier (par rapport à un axe vertical : schéma de gauche), il n'y a aucune raison que la force soit orientée différemment que dans le premier cas, elle est donc répulsive. Mais il est clair que les contraintes appliquées par le cisaillement dans ces deux derniers cas (après renversement du temps et symétrie miroir) sont les mêmes, et donc, par unicité des solutions, que la force de portance résultante doit être la même. Cette dernière est donc nécessairement nulle dans une telle géométrie symétrique.

Il existe deux façons non exclusives de briser cette symétrie géométrique. Le cas traité par Isabelle CANTAT [26] revenait à rendre déformable, et donc asymétrique (du fait de l'écoulement imposé) l'objet soumis au cisaillement (il s'agissait bien entendu d'une vésicule). Nous nous sommes intéressés au cas opposé, c'est-à-dire dans lequel l'objet reste symétrique (une sphère, ou un cylindre à deux dimensions), mais où la paroi cette fois devient déformable. Le raisonnement est *a priori* toujours valable, et nous nous attendons à voir apparaître une force verticale sur le cylindre.

Dans ce dernier cas, nous pouvons même aller plus loin. En effet, deux cas limites sont alors triviaux. Le premier concerne le cas du mur rigide. Nous l'avons vu, la force de portance est alors nulle. Dans le second, à l'inverse, le substrat est infiniment déformable. Dans cette configuration, il va se confondre avec une ligne de courant et est passivement transporté par l'écoulement. Il n'aura donc aucune influence ni sur la vitesse, ni sur la pression. La force de portance sur le cylindre est alors nulle également. Entre ces deux extrêmes, un maximum doit exister.

Naturellement, le cas des vésicules est plus complexe, puisqu'alors la force de portance est non nulle même dans le cas d'un substrat rigide. La question de la persistance de ce maximum est posée à la fin de ce paragraphe.

2.2 Modélisation du système

Le premier problème consiste donc à modéliser la réponse élastique du substrat. Nous allons voir que nous pouvons nous passer de la résolution complète des équations de l'élasticité dans le substrat, qui, malgré leur linéarité, sont complexes puisque non locales [92].

2.2.1 Approche analytique : linéarisation des équations de Lamé

Nous allons donc considérer le cas d'un substrat d'épaisseur L, compris entre $y = 0$ et $y = -L$ (voir figure 2.3). Le fluide en mouvement va provoquer l'apparition de contraintes normales et tangentielles sur le substrat qui seront

données par :

$$\begin{cases} \sigma_{nn} = F(x,h(x)) \\ \\ \sigma_{nt} = G(x,h(x)) \end{cases} \tag{2.3}$$

($h(x)$ représente le profil de la paroi). Nous avons implicitement supposé que le système était invariant dans la direction y. En l'absence de forces volumiques extérieures, les équations générales des corps élastiques se réduisent à [92]:

$$\begin{cases} \partial_x \sigma_{xx} + \partial_y \sigma_{xy} = 0 \\ \\ \partial_x \sigma_{yx} + \partial_y \sigma_{yy} = 0 \end{cases} \tag{2.4}$$

La résolution analytique de ces équations est possible, dans la limite des faibles déformations. Le principe du calcul est simple. Nous connaissons en effet la loi de HOOKE qui relie les contraintes aux déformations dans le matériau :

$$u_{ik} = \frac{1+\sigma}{E}\sigma_{ik} - \frac{\sigma}{E}\sigma_{ll}\delta_{ik} \tag{2.5}$$

avec u_{ik} le champ de déformations locale défini par $\partial_k u_i$ (u_i étant le déplacement dans la direction i). E est le module d'YOUNG et σ le coefficient de POISSON. En résolvant le système 2.4 en termes de fonctions d'AIRY, comme cela est détaillé dans l'annexe E, nous pouvons grâce à cette dernière relation obtenir les déformations dans le substrat. Les conditions aux limites sur la contrainte (équations 2.3) combinées aux conditions de non déformation sur la partie inférieure du substrat :

$$\begin{cases} u_x(y=-L) = 0 \\ \\ u_y(y=-L) = 0 \end{cases} \tag{2.6}$$

nous permettent de déterminer entièrement la solution, et donc le champ de déformation dans tout le substrat, qui va ainsi dépendre des contraintes appliquées. Pour fermer le problème, nous supposons alors que la contrainte tangentielle est nulle, ce qui est raisonnable dans le cas de faibles déformations, et nous identifions le déplacement $u_y(y=0)$ avec le profil $h(x)$ de l'interface. Dans la limite d'un substrat de faible épaisseur devant l'amplitude des déformations, nous obtenons au premier ordre une relation linéaire entre la déformation verticale et la contrainte normale appliquée, donnée explicitement par :

$$F(x) = E\frac{\sigma-1}{(2\sigma-1)(\sigma+1)}\frac{h(x)}{L}. \tag{2.7}$$

De façon assez surprenante, la non localité propre aux équations de LAMÉ disparaît dans cette limite. Ainsi, pour modéliser la réponse élastique du sub-

strat, nous n'allons pas devoir calculer le champ de déformation dans tout le matériau, mais uniquement le déplacement de l'interface.

2.2.2 Approche numérique

Nous allons d'abord considérer le cas général des vésicules : du point de vue de la modélisation, le cylindre rigide n'apparaît alors que comme un cas particulier. La description mécanique de la membrane reste la même que dans le paragraphe précédent. Dans le contexte qui nous intéresse ici, trois contraintes vont agir sur le fluide :

- la **contrainte de gravité**, qui agit uniquement sur la vésicule. Cette contrainte est importante, puisqu'elle va s'opposer à la force de portance et ainsi permettre à la vésicule d'atteindre un état stationnaire. Dans le cas du travail d'Isabelle CANTAT, le confinement de la vésicule était assuré par l'adhésion avec le substrat. Nous avons préféré travailler avec la gravité, mieux contrôlée (aussi bien d'un point de vue expérimental que théorique). La contrainte de gravité est donnée par $\mathbf{f}_g = -\rho_c g \mathbf{y}$ avec ρ_c la densité du cylindre ou de la vésicule, g l'accélération de la pesanteur et $\mathbf{y}$ le vecteur unitaire orienté verticalement. Il s'agit bien d'une force par unité de volume. Dans le cadre d'une approche de type champ de phase, cette force est définie dans tout l'espace. Elle est alors donnée par :

$$\mathbf{f}_g = -\rho_c g \frac{1-\theta}{2} \mathbf{y}. \tag{2.8}$$

  Le temps caractéristique de sédimentation associé à cette force est donné par $\tau_{sed} = \eta_{ext}/\pi\rho_c g R^2$.
- la **contrainte membranaire**. En effet, notre objectif est finalement d'étudier la force de portance exercée sur des vésicules. Cette contribution est donnée par l'équation (1.21). Deux temps caractéristiques peuvent être construits, le premier associé à la relaxation des modes de courbure, alors que le second, que nous supposerons négligeable par la suite, est plutôt associé à la contrainte d'incompressibilité de la membrane. Les échelles de temps associées sont définies respectivement par $\tau_\kappa = \eta_{ext} R^3/\kappa$ et $\tau_T = \eta_{ext} R/T$.
- la **contrainte liée au substrat**, notée $\mathbf{f}_s$. Tout d'abord, remarquons que cette surface est libre, et nécessite donc elle aussi un traitement particulier. Dans le cadre de notre approche préliminaire, nous avons décrit la dynamique de cette frontière grâce à un deuxième champ de phase ϕ, qui obéira à une équation non conservative similaire à celle utilisée pour θ, associé à la vésicule. La contrainte liée à la membrane est

2. Le facteur π vient de l'intégration de $\mathbf{f}_g$ sur la section.

donc calculée dans tout l'espace, et localisée au niveau de la membrane grâce à la fonction de DIRAC régularisée $|\nabla\phi|/2$. L'équation dynamique qui permettra le calcul de cette contribution est la suivante :

$$\partial_t \mathbf{f}_s = -\mathbf{v}.\nabla\mathbf{f}_s + \frac{K}{L}\mathbf{v} + \epsilon_{\mathbf{f}_s}\Delta\mathbf{f}_s \tag{2.9}$$

avec K un module élastique effectif défini d'après le paragraphe précédent par :

$$K = E\frac{1-\sigma}{(1-2\sigma)(1+\sigma)}. \tag{2.10}$$

et un terme diffusif stabilisateur. Dans l'équation (2.9), $\mathbf{v}$ est la vitesse du fluide qui va provoquer le déplacement de l'interface. Le temps caractéristique associé à cette contrainte est donné par $\tau_K = \eta_{ext}L/KR$

La fréquence de sollicitation par le cisaillement est donnée par $\dot{\gamma}$. Deux nombres sans dimension supplémentaires apparaissent donc dans le problème. Ils sont regroupés dans le tableau 2.1, qui complète le tableau 1.1 déjà présenté pour les vésicules isolées (page 113). Le nombre total de paramètres s'élève ainsi à 7.

Paramètre	Nom	Définition	Valeur typique
Ca_K	Nombre élastique	$\eta_{ext}\dot{\gamma}L/KR$	10^{-4} à 1
Ca_G	Nombre de sédimentation	$\eta_{ext}\dot{\gamma}/\pi\rho_c gR$	1 à 4

TAB. 2.1 – *Paramètres sans dimension intervenant dans l'étude de la force de portance.*

Le cylindre est alors modélisé en prenant une valeur élevée pour le rapport de viscosités, et un taux de dégonflement de 1. Une forte viscosité permet de ralentir la dynamique interne du liquide. En effet, les contraintes de surface et de périmètre fixés ne sont jamais totalement respectées. Augmenter la viscosité interne ne supprime pas les écarts, mais ralentit leur apparition. La contrainte de tension interdit l'apparition de gradients de vitesse sur l'interface du liquide, et assure ainsi l'absence de glissement sur l'interface. Les seuls nombres variables dans ce contexte sont donc le nombre de sédimentation et le nombre élastique.

Nous allons pouvoir confronter directement les résultats obtenus avec la méthode du champ de phase à ceux obtenus par le biais d'une méthode intégrale, dont le principe est détaillé dans la thèse d'Isabelle CANTAT [26], ou plus complétement dans [120][3]. Précisons néanmoins que la particule est

3. L'algorithme initialement développé par Isabelle CANTAT, a été modifié par Thierry BIBEN pour inclure les effets de déformabilité au niveau de la paroi.

discrétisée par 60 nœuds, régulièrement espacés, alors que le substrat est décrit par un maillage parabolique de 120 nœuds. La densité de points est plus élevée au voisinage de la particule (voir 2.2). Il est à noter que le substrat peut ainsi être étendu jusqu'à 9000 fois la taille de la particule, ce qui rend les effets de bord totalement négligeables, comme nous l'avons d'ailleurs vérifié en changeant la taille du domaine de résolution.

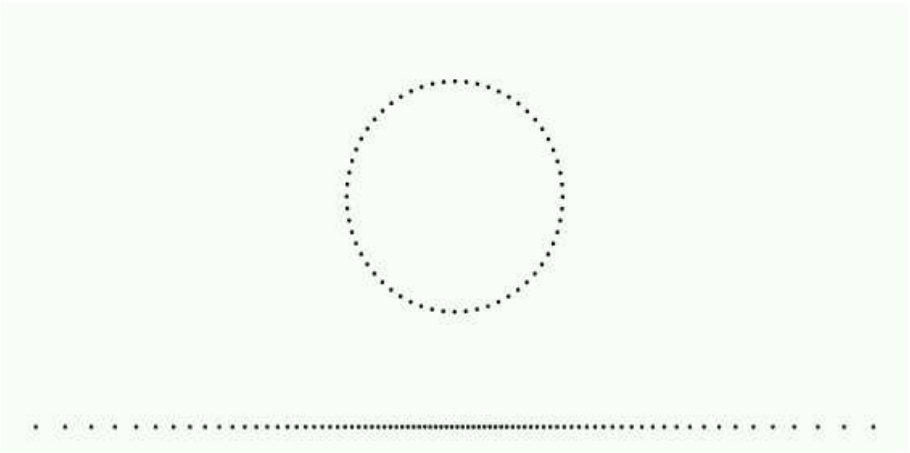


FIG. 2.2 – *Maillage initial utilisé pour la résolution en terme de fonctions de* GREEN. *Une répartition parabolique de points est utilisée pour le substrat.*

2.3 Dynamique d'un cylindre au voisinage du substrat déformable

Nous commençons donc par nous focaliser sur le cas simple d'un cylindre infini. Les variables que nous allons utiliser sont représentées sur la figure 2.3. $d(x)$ désigne la distance entre la position initiale du substrat et le cylindre. $h(x)$ désigne le profil du substrat déformé ($h(x) \leq 0$). d_0 est la distance minimale entre le cylindre et le substrat non déformé. Enfin, V_r représente la vitesse de rotation du cylindre, et V_t sa vitesse de translation.

Nous allons présenter dans un premier temps les calculs analytiques que nous avons effectués dans la limite des faibles déformabilités pour le substrat, puis les résultats numériques.

2.3.1 Calcul analytique perturbatif

Si la distance entre le cylindre et le substrat est suffisamment faible, alors l'hypothèse de lubrification est raisonnable [68]. Cette hypothèse revient à supposer que la courbure du canal formé par le cylindre et le substrat est

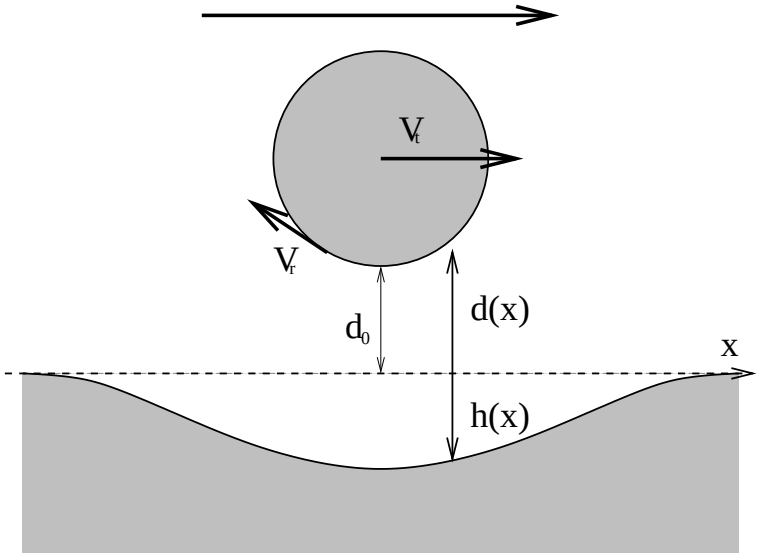


FIG. 2.3 – *Variables utilisées pour le calcul de lubrification.*

négligeable, c'est-à-dire que le profil est suffisamment régulier pour que nous puissions nous contenter d'une approximation au 1^{er} ordre. Les équations de STOKES se réduisent alors à :

$$\begin{cases} \partial_{yy} v_x - P'(x) = 0 \\ \\ \partial_x v_x + \partial_y v_y = 0 \end{cases} \tag{2.11}$$

avec les conditions aux limites adaptées sur le cylindre et le substrat. Nous voyons ici clairement apparaître l'approximation au 1^{er} ordre, puisque seules les dérivées premières des profils interviennent :

$$\begin{cases} v_x(x,d(x)) = -V_r \\ \\ v_y(x,d(x)) = -V_r d'(x) \end{cases} \qquad \begin{cases} v_x(x,h(x)) = -V_t \\ \\ v_y(x,h(x)) = -V_t h'(x) \end{cases} \tag{2.12}$$

Dans ces équations, la notation $f'(x)$ désigne la dérivée de $f(x)$ par rapport à x. Nous présentons dans l'annexe E un calcul complet du champ de pression entre le cylindre et le substrat en suivant la procédure présentée dans [147, 153]. Dans ces deux références, un cylindre est soumis à une force horizontale bien contrôlée au voisinage d'un substrat déformable. Dans ce cas, la rotation du cylindre sur lui-même est nulle.

On peut toutefois utiliser un raisonnement simple qui nous permet d'obtenir sans calcul une équation reliant la pression à la forme du canal. La linéarité des équations de STOKES permet d'écrire le débit Q en chaque point de l'intervalle comme la somme de deux contributions. La première est due au gradient de

pression local dP/dx, qui force un profil parabolique de type POISEUILLE. La seconde est causée par le mouvement relatif des interfaces, qui impose plutôt un profil linéaire de type COUETTE. Ainsi nous avons :

$$\frac{1}{12\eta}\frac{dP(x)}{dx}\left(d(x)-h(x)\right)^3+\frac{V_r+V_t}{2}\left(d(x)-h(x)\right)=Q. \tag{2.13}$$

Si $h(x)=d(x)$, alors le débit est nul, ce qui est normal puisque dans ce cas la distance entre le cylindre et le substrat est nulle elle aussi.

L'étape suivante consiste alors à utiliser la relation linéaire que nous avons dérivée dans le paragraphe précédent, qui relie la pression au profil du substrat :

$$\frac{h(x)}{L}=-\frac{P(x)}{K}. \tag{2.14}$$

avec L l'épaisseur du substrat. Pour que ce dernier soit totalement écrasé ($h(x)=L$), il faut que la pression appliquée soit du même ordre de grandeur que le module élastique K. Le signe négatif vient de la définition de $h(x)$ qui est négative (voir schéma 2.3). En injectant cette relation dans l'équation (2.13), nous obtenons une expression ne faisant intervenir que la pression. Une fois adimensionnée, cette relation peut être résolue perturbativement en utilisant comme petit paramètre un terme essentiellement proportionnel à $1/K$ (voir annexe E). L'ordre 0 de ce développement correspond donc à un mur rigide, l'ordre 1 à un mur légérement déformable, etc... Les pressions à l'ordre 0 et 1 sont données par (en variables dimensionnées) :

$$P^{(0)}(x)=\frac{2\eta\left(V_r+V_t\right)}{d_0^2}\frac{1}{\left(1+x^2/2Rd_0\right)^2} \tag{2.15}$$

et

$$P^{(1)}(x)=\frac{\eta\left(V_r+V_t\right)\sqrt{2Dd_0}}{2d_0^2}\left(\frac{96}{5\left(1+x^2/2Rd_0\right)^5}-\frac{12}{\left(1+x^2/2Rd_0\right)^4}\right). \tag{2.16}$$

La contribution d'ordre 0 est antisymétrique par rapport à x et ne donne donc pas de force de portance, comme nous pouvions nous y attendre compte-tenu du paragraphe précédent. Par contre, la pression au premier ordre est bien symétrique, et donne une force résultante non nulle et positive :

$$F_{port}^{(1)}=\int_{-\infty}^{+\infty}P^{(1)}(x)dx=\frac{3\pi\sqrt{2}}{4}\frac{LR^{3/2}\eta^2\left(V_r+V_t\right)^2}{Kd_0^{7/2}} \tag{2.17}$$

(les détails du calcul sont donnés dans l'annexe E).

Remarquons que la force de portance décroît avec l'altitude (ce qui est tout-à-fait intuitif : au-delà d'une certaine distance l'influence du substrat est totalement négligeable. Nous retrouvons alors un problème symétrique, sans

force de portance). L'état stationnaire est alors atteint quand la somme des forces sur le cylindre est nulle, ce qui nous conduit à la relation suivante :

$$F_{port}^{(1)} = \rho_c \pi R^2 g \quad \Rightarrow \quad 3\pi\sqrt{2} Ca_K Ca_G \frac{\left(V_m/R\dot{\gamma}\right)^2}{\left(d_0/R\right)^{7/2}} = 1 \tag{2.18}$$

avec $V_m = (V_r + V_t)/2$. Ainsi, quelle que soit la valeur du poids du cylindre, nous nous attendons à ce que la hauteur d'équilibre soit une fonction du produit $Ca_K Ca_G$, dans la limite des faibles Ca_K. Nous allons pouvoir vérifier cette hypothèse numériquement.

Une dernière remarque s'impose avant cela. Il faut bien noter que la quantité V_m dépend elle-même de d_0/R d'une façon que le simple modèle de lubrification que nous avons développé ici ne nous permet pas de prévoir. Un certain nombre de modèles permettent d'obtenir la vitesse de translation **dans un fluide au repos** d'un cylindre rigide au voisinage d'un substrat lui aussi rigide, si la force motrice est constante et parallèle au substrat. Si nous notons F cette force, au premier ordre nous obtenons [80] :

$$V_t = \frac{F}{4\pi\eta}\sqrt{\frac{2d_0}{R}}. \tag{2.19}$$

Dans ce cas la vitesse de rotation est nulle. Sous cisaillement, il est difficile d'exprimer la force motrice F, même si en général une simple analyse dimensionnelle $F \sim \eta\dot{\gamma}R$ suffit à donner de bons résultats [26]. D'autres auteurs ont calculé la vitesse de rotation et de translation d'une sphère soumise à un cisaillement au voisinage d'une paroi rigide [65] :

$$\begin{cases} V_t = d_0\dot{\gamma}\dfrac{0{,}7431}{0{,}6376 - 0{,}200\ln\left(d_0/R\right)} \\ \\ V_r = \dfrac{R\dot{\gamma}}{2}\dfrac{0{,}8436}{0{,}6376 - 0{,}200\ln\left(d_0/R\right)} \end{cases} \tag{2.20}$$

Ces résultats sont valables dans la limite de lubrification. De façon surprenante, il semblent suggérer qu'une sphère posée sur un substrat ($d_0 = 0$) et soumise à un cisaillement ne bougera pas (V_r,$V_t \to 0$). La dépendance logarithmique est ici essentiellement la conséquence de la symétrie sphérique de l'objet considéré, et il serait difficile d'utiliser ces résultats pour fermer notre problème. Nous allons donc adopter une autre approche.

2.3.2 Résultats numériques

Nous avons mesuré l'altitude d'équilibre du cylindre pour différentes valeurs des paramètres Ca_K et Ca_G [13]. Les résultats bruts sont représentés sur la figure 2.4. Un maximum est nettement visible, que nous pouvons interpréter

comme un maximum dans la force de portance. En effet, d_0 est une fonction de la force de portance, qui est égale dans la situation d'équilibre au poids $\mathcal{P}$ du cylindre, et de la rigidité K du substrat. Nous pouvons alors écrire :

$$\left.\frac{\partial d_0}{\partial K}\right|_{F_{port}} = -\left.\frac{\partial d_0}{\partial \mathcal{P}}\right|_K \cdot \left.\frac{\partial \mathcal{P}}{\partial K}\right|_{d_0} \tag{2.21}$$

Or, d_0 est une fonction décroissante du poids $\mathcal{P}$, et ainsi le maximum observé pour d_0 correspond bien à un maximum pour la force de portance.

Dans la limite des faibles déformabilités, nous pouvons voir sur la figure 2.5 que l'altitude obéit à une loi de puissance en fonction du paramètre $Ca_K Ca_G$. Nous pouvons ainsi écrire :

$$\frac{d_0}{R} \propto (Ca_K Ca_G)^{\beta} \tag{2.22}$$

avec $\beta \sim 0{,}25$ (voir figure 2.5). En injectant cette relation dans l'équation 2.18, nous arrivons sans difficulté à la relation suivante pour la vitesse moyenne :

$$V_m \propto \left(\frac{d_0}{R}\right)^{\mu_{lub}} \tag{2.23}$$

avec $\mu_{lub} = -(1/\beta - 3.5)/2$. Nous nous attendons donc à obtenir un comportement de type loi de puissance pour la vitesse moyenne également, ce qui est manifestement le cas d'après la figure 2.6 (log-log). Nous avons donc :

$$V_m \propto \left(\frac{d_0}{R}\right)^{\mu_{num}} \tag{2.24}$$

avec $\mu_{num} = 0{,}77$. Si notre modèle de lubrification est valable, nous nous attendons à trouver :

$$\mu_{num} = \mu_{lub} \tag{2.25}$$

Cette relation n'est pas du tout vérifiée puisque $\mu_{lub} = -0{,}25$. La figure 2.4 fournit un premier élément pour expliquer un tel désaccord. Pour les valeurs les plus faibles de Ca_K, qui correspondent *a priori* au domaine d'application du modèle de lubrification, l'altitude d'équilibre du cylindre n'est pas du tout nulle. Elle est même comparable au rayon du cylindre lui-même. Dès lors, l'approximation au premier ordre pour le profil de l'intervalle n'est plus du tout raisonnable, et il est donc normal que l'approximation de lubrification ne donne pas de meilleur résultat ici.

Nous pouvons comprendre l'origine de ce problème en nous rappelant que notre algorithme de résolution implique l'existence de conditions aux limites périodiques, qui peuvent avoir un effet non négligeable sur la dynamique, en particulier à deux dimensions. Dans le cas présent, les contraintes géométriques

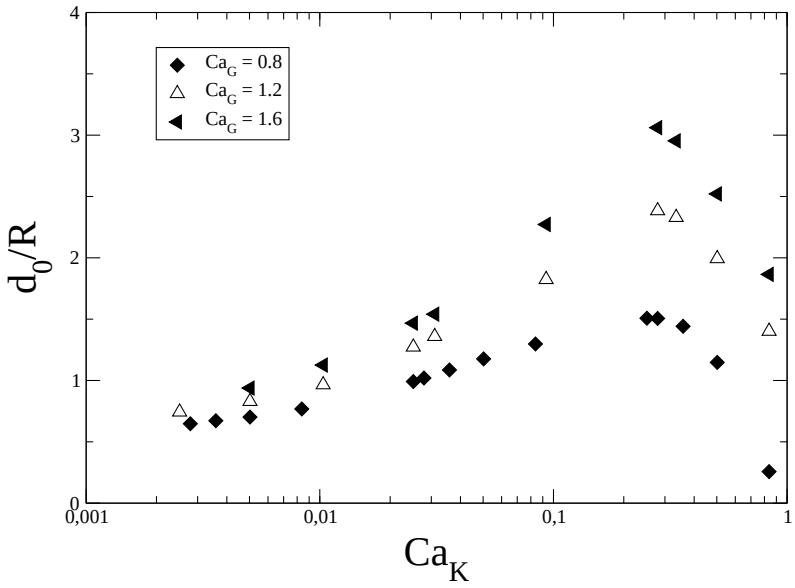


FIG. 2.4 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat, résultats bruts (champ de phase).*

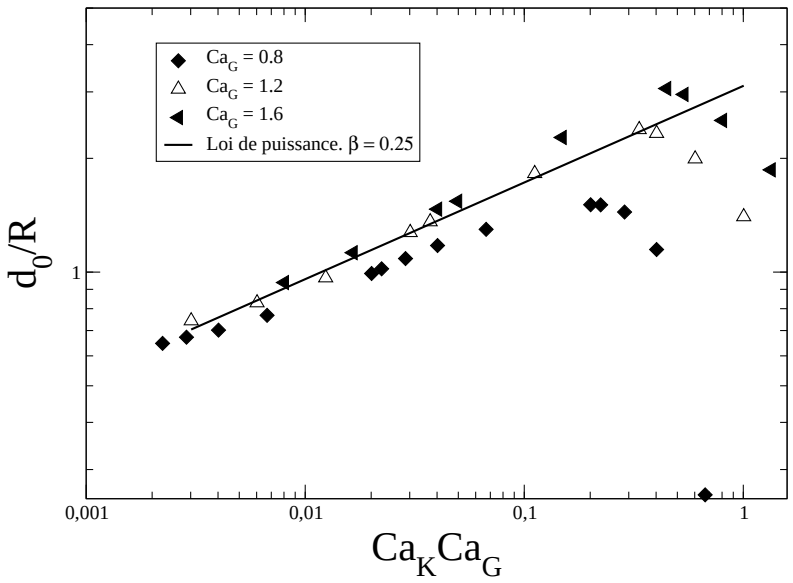


FIG. 2.5 – *Altitude en fonction du produit $Ca_K Ca_G$ (champ de phase). Un comportement asymptotique de type loi de puissance est visible dans la limite des faibles Ca_K.*

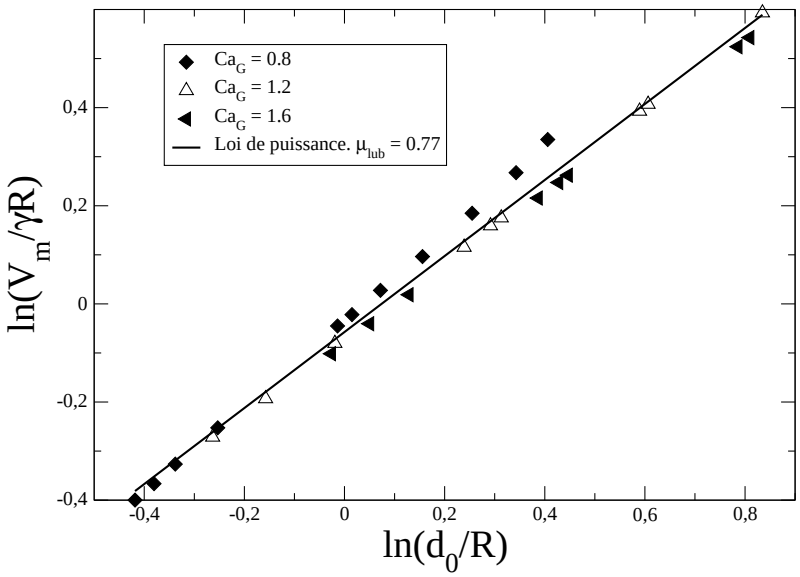


FIG. 2.6 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat (champ de phase).*

sont très importantes puisque les déformations du substrat peuvent s'étendre au-delà du domaine de résolution effective des équations dynamiques. Il convient alors de parler de la densité de cylindres, qui est inversement proportionnelle à la taille du domaine de résolution numérique. Dans le bilan des forces mécaniques qui interviennent sur le substrat, c'est cette densité qui est importante. Quand elle devient suffisamment forte, des déformations cumulées apparaissent même aux très faibles valeurs de Ca_K, et provoquent l'apparition d'une force de portance supplémentaire. Nous verrons d'ailleurs que ces effets apparaissent sur toute la plage de valeurs de Ca_K que nous avons explorée.

Par ailleurs, ces mêmes conditions aux limites périodiques impliquent l'existence d'une seconde paroi (et même d'une infinité, en toute rigueur...) au dessus du cylindre. Cette fois encore, si le domaine de résolution est trop petit, le cylindre va ressentir la présence de cette seconde paroi, qui va provoquer l'apparition d'une seconde "force de portance", opposée à la première. Cet effet est d'autant plus sensible que le cylindre est léger, puisqu'alors son altitude d'équilibre est plus importante.

Naturellement, il est toujours possible d'augmenter la taille du domaine de résolution, mais les temps de calculs deviennent rapidement prohibitifs. En effet, il ne faut pas oublier que nous avons trois équations supplémentaires à résoudre (une pour le champ de phase ϕ associé au substrat, et deux pour la

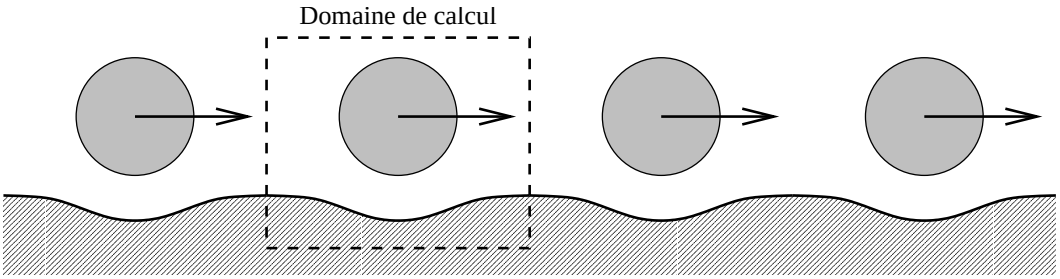


FIG. 2.7 – *Schéma des conditions aux limites périodiques dans la direction du cisaillement (champ de phase).*

force de rappel, qui est vectorielle). Pour toutes ces raisons, il était plus raisonnable d'utiliser la méthode des fonctions de GREEN pour étudier ce problème [4]. La méthode du champ de phase, plus facile à implémenter dans un premier temps, nous a permis de confirmer l'existence de cet effet, et de déterminer les ordres de grandeurs pertinents pour les différents paramètres.

Nous voyons que dans le cadre de cette modélisation, les résultats sont bien meilleurs. En effet, le cylindre sédimente effectivement jusqu'au substrat (voir figure 2.8) dans la limite des faibles déformabilités du substrat (qui correspond à $Ca_K \leq 10^{-3}$). Nous avons pu également explorer une gamme de valeurs plus large pour le paramètre Ca_G, puisque nous n'étions plus limités par aucun effet de confinement. Le tracé de l'altitude réduite en fonction de $Ca_K Ca_G$ nous donne $\beta \sim 0{,}44$. Il convient également de remarquer que pour une valeur de Ca_G identique, l'altitude d'équilibre atteinte par le cylindre est nettement supérieure dans le cas du champ de phase, du fait même des conditions aux limites périodiques évoquées ci-dessus.

De la même façon que précédemment, nous pouvons alors mesurer la vitesse moyenne V_m, et nous obtenons la courbe 2.10. Une loi de puissance peut être utilisée pour obtenir une loi de comportement asymptotique dans la limite des faibles déformabilités. En nous inspirant de la dépendance en racine carrée du résultat de JEFFEREY (2.19), nous constatons que l'exposant $\mu_{num} = 0{,}5$ est en bon accord avec les valeurs obtenues numériquement (voir figure 2.10). Nous voyons également sur cette courbe que le comportement en loi de puissance n'est véritablement raisonnable que pour les faibles valeurs de d_0/R (qui correspondent typiquement à des altitudes d'équilibre de l'ordre du dixième du rayon du cylindre).

Nous obtenons une valeur légérement différente en injectant une loi de puissance dans le résultat de la lubrification ($\mu_{lub} \sim 0{,}61$). Néanmoins, l'accord est bien meilleur que dans le cadre d'une approche de type champ de phase. Nous pouvons imaginer que les résultats pourraient être améliorés en introduisant

4. L'ensemble du développement de cet algorithme a été effectué par Thierry BIBEN sur la base des résultats préliminaires obtenus par la méthode du champ de phase.

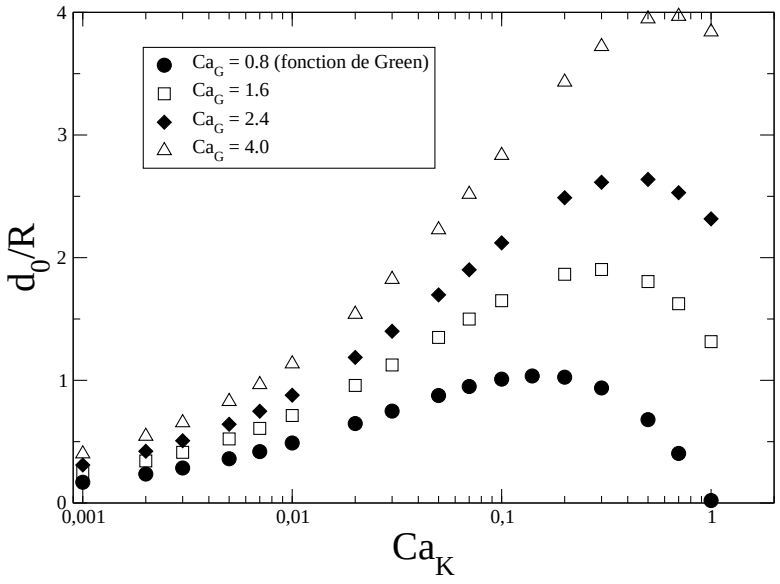


FIG. 2.8 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat (méthode intégrale).*

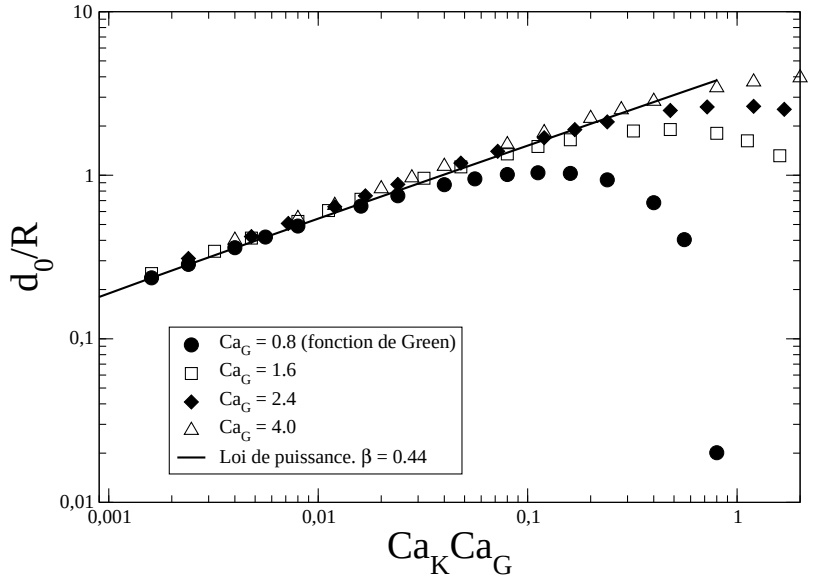


FIG. 2.9 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat (méthode intégrale).*

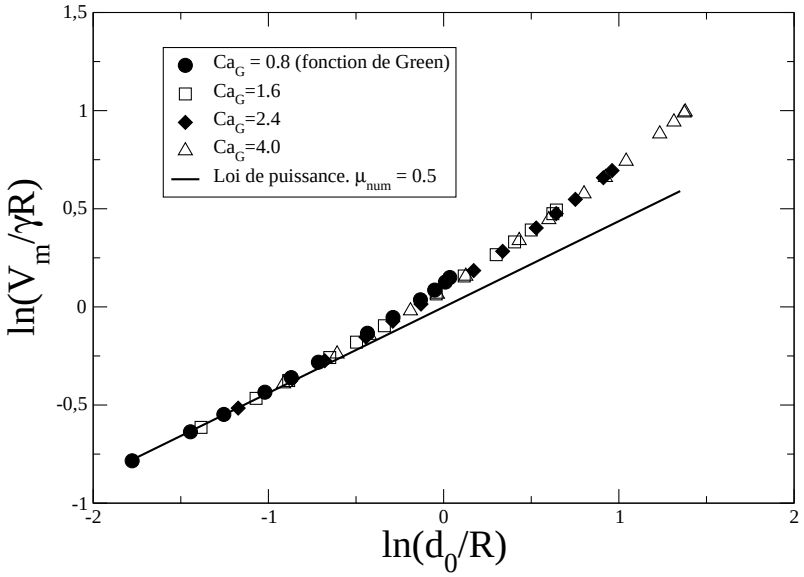


FIG. 2.10 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat.*

une longueur de coupure artificielle dans le calcul de lubrification (voir annexe E). En effet, dans le cadre de ce calcul nous sommes amenés à intégrer l'excès de pression sous le cylindre entre $-\infty$ et $+\infty$ puisque nous approximons la forme du cylindre par une parabole. En principe, une telle approximation n'est pas déraisonnable si l'excès de pression décroît suffisamment rapidement, mais en toute rigueur il n'est jamais nul. Toutefois, un tel traitement ne ferait que rejeter la difficulté dans l'évaluation de cette longueur, sans réellement modifier les fondements du traitement. Nous n'avons donc pas cherché à aller plus loin dans cette direction.

En utilisant les relations (2.17) et (2.24) nous obtenons la dépendance suivante pour la force de portance :

$$F_{port}^{(1)} \sim \frac{\eta^2 L}{K R^2} \left(\frac{R}{d_0}\right)^{7/2-2\mu_{lub}}, \tag{2.26}$$

soit encore, avec $\mu_{num} = 0{,}5$:

$$F_{port}^{(1)} \sim \frac{\eta^2 L}{K} \frac{R^{1/2}}{d_0^{5/2}}. \tag{2.27}$$

Cette relation est valable dans la limite de lubrification. Les deux approches livrent une dernière information intéressante. Il est tentant en effet d'essayer

de regrouper les différentes courbes obtenues en une seule courbe maîtresse, compte-tenu de leurs similitudes (voir figure 2.4 et 2.8). Dans ce cas, le paramètre de contrôle pertinent est le rapport Ca_K/Ca_G :

$$\frac{Ca_K}{Ca_G} = \pi \frac{\rho_c g}{K} \tag{2.28}$$

qui traduit explicitement la compétition entre la force appliquée au système par l'intermédiaire du poids du cylindre et la résistance du substrat. Le fluide, caractérisé par sa viscosité η et son écoulement (gouverné essentiellement par $\dot{\gamma}$) n'intervient pas dans l'équilibre des forces mécaniques. En d'autres termes, l'écoulement va agir sur l'amplitude du maximum que nous avons mis en évidence, par l'intermédiaire du paramètre Ca_G, mais pas sur sa position. Nous aurons donc une relation universelle du type :

$$\frac{d_0}{R} = Ca_G^{\alpha} \; f\left(\frac{Ca_K}{Ca_G}\right) \tag{2.29}$$

avec $\alpha = 0{,}9$ dans le cas du champ de phase et $\alpha = 0{,}88$ avec la méthode intégrale. La fonction f est représentée sur les graphes 2.11 et 2.12.Une fois encore, le champ de phase se révèle tout-à-fait efficace pour mettre en évidence qualitativement les effets physiques, et permet même d'obtenir les lois d'échelle correctes, ce qui est révélateur de la cohérence et d'une certaine robustesse de la méthode. Les différents exposants mesurés sont regroupés dans le tableau 2.2, page 145.

Exposant	Champ de phase	Méthode intégrale
β	0,25	0,44
μ_{lub}	-0,25	0,61
μ_{num}	0,77	0,50
α	0,90	0,88

TAB. 2.2 – *Exposants mesurés dans le cas du cylindre, avec la méthode du champ de phase et les fonctions de* GREEN.

Notre objectif initial était néanmoins d'étudier la force de portance sur les vésicules. Compte-tenu des remarques que nous avons pu faire jusqu'à présent, nous avons préféré utiliser la méthode intégrale.

2.4 Le cas des vésicules

Plusieurs études consacrées à la dynamique de vésicules sous cisaillement ont été proposées récemment. Une première classe de problèmes concerne la transition de décollement induite par cisaillement sur des vésicules en adhésion

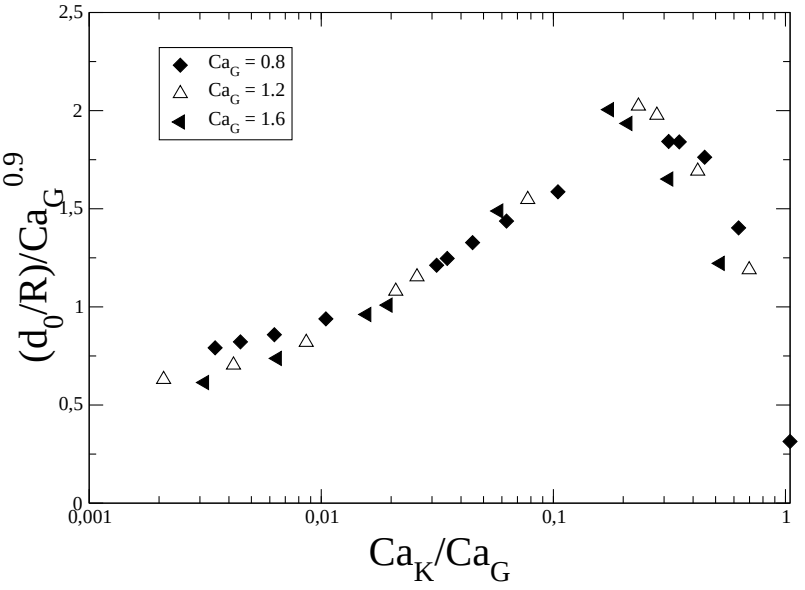


FIG. 2.11 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat. Courbe maîtresse dans le cas du champ de phase.*

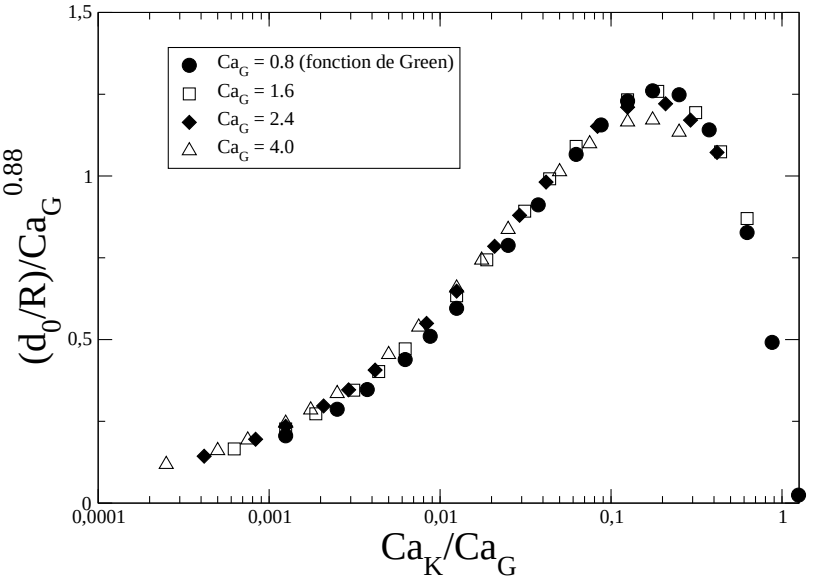


FIG. 2.12 – *Altitude en fonction de la déformabilité du substrat. Courbe maîtresse dans le cas d'une modélisation par la méthode intégrale.*

sur un substrat rigide [25, 146]. La première approche, numérique, était basée sur une résolution complète du problème de STOKES bidimensionnel par le biais des fonctions de GREEN. La seconde reposait sur un calcul de lubrification lui aussi bidimensionnel sur une sphère tronquée. Dans les deux cas, un taux de cisaillement critique a pu être mis en évidence, au-delà duquel la vésicule se décolle du substrat.

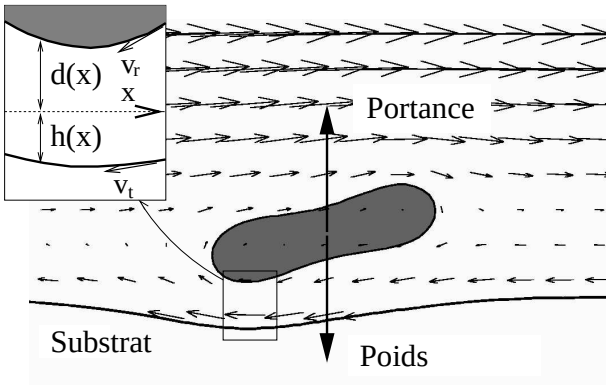


FIG. 2.13 – *Configuration typique pour une vésicule avec* $\tau_{2D} = 0{,}6$.

L'apparition de la force de portance a été confirmée par un calcul numérique tridimentionnel basé lui aussi sur l'utilisation des méthodes intégrales [161]. Dans ce travail, les auteurs mesurent la vitesse de dérive de la vésicule et en utilisant la relation de STOKES pour les billes en sédimention dans un liquide visqueux ($F = 6\pi\eta Rv$), ils en déduisent une relation en R^4/d_0^2 pour la force de portance en l'absence de gravité. Ce résultat est alors utilisé pour confronter les prédictions numériques aux résultats expérimentaux en présence de gravité. Certains calculs perturbatifs tiennent compte du contraste de viscosités et des deux types de mouvement possibles, évoqués dans le chapitre précédent ("tank treading" et bascule) [109]. Dans le régime stationnaire, une vitesse de dérive en R^3/d_0^2 est ainsi obtenue. Cette vitesse tend vers 0 au voisinage de la transition de bascule. Dans le régime non stationnaire, la vitesse de dérive est nulle en moyenne, ce qui est assez intuitif puisqu'alors nous retrouvons une symétrie sphérique, qui implique la disparition de la force de portance.

Expérimentalement, la force de portance exercée sur des vésicules pesantes a pu être mesurée par visualisation directe de l'altitude d'équilibre [3]. En changeant le rapport de densité entre les liquides internes et externes, les auteurs ont pu obtenir la dépendance de la force de portance en fonction de la hauteur. Ils obtiennent ainsi une dépendance en R^3/d_0, valide même en dehors du domaine de lubrification.

Nous avons repris la même valeur $Ca_\kappa = 0{,}5$ pour la déformabilité de la membrane par courbure que dans l'étude de la transition de bascule. Par souci de simplicité, nous avons fixé le contraste de viscosités à 1, ce qui est bien

inférieur à toutes les valeurs du seuil de transition que nous avons mesurées dans le paragraphe précédent. En outre, l'introduction d'une paroi a plutôt tendance à relever ces seuils. Ainsi, nous nous sommes affranchis des possibles complications induites par la présence d'un mouvement instationnaire de type bascule.

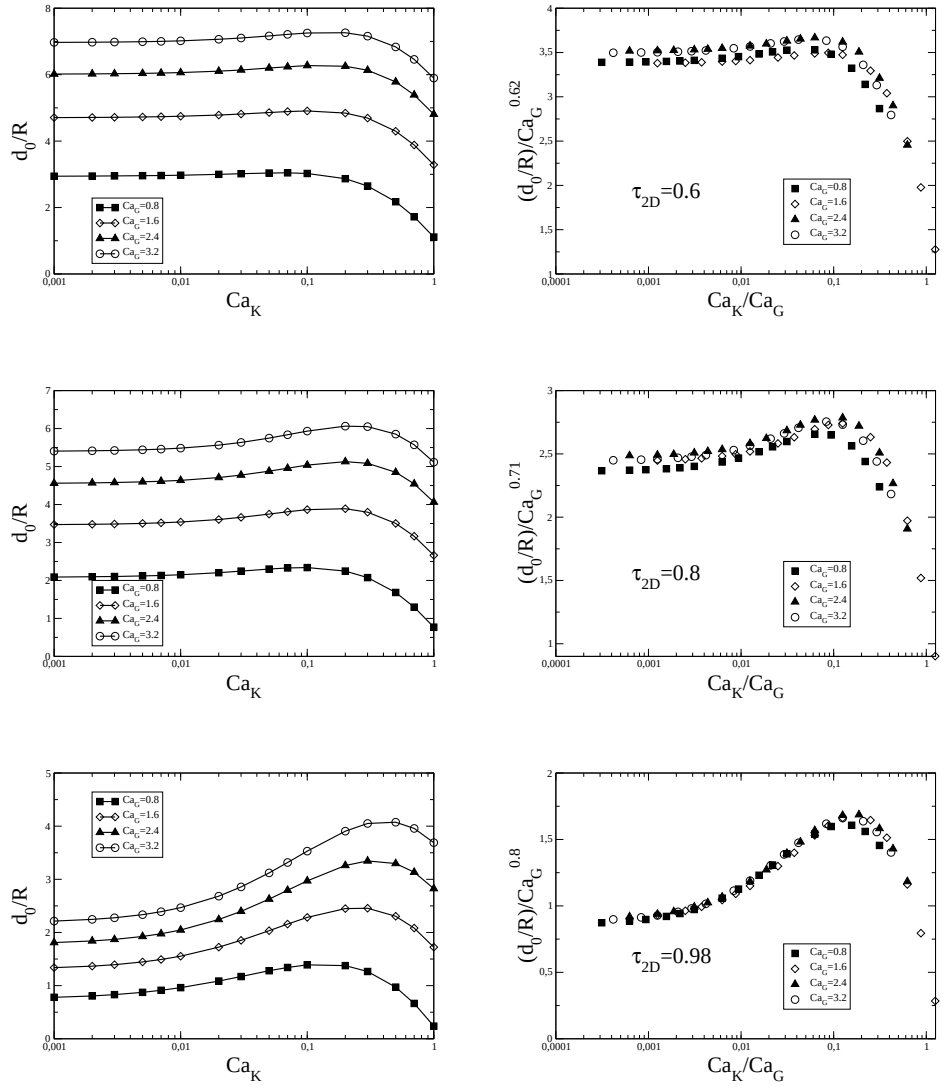


FIG. 2.14 – *Altitude en fonction de la rigidité du substrat (méthode intégrale). Influence du taux de dégonflement.*

Le seul paramètre supplémentaire par rapport au cas des sphères est donc le taux de dégonflement τ_{2D}, que nous avons fait varier entre 0,6 et 0,98. Une configuration typique est représentée sur la figure 2.13, avec un taux de

dégonflement de 0,6.

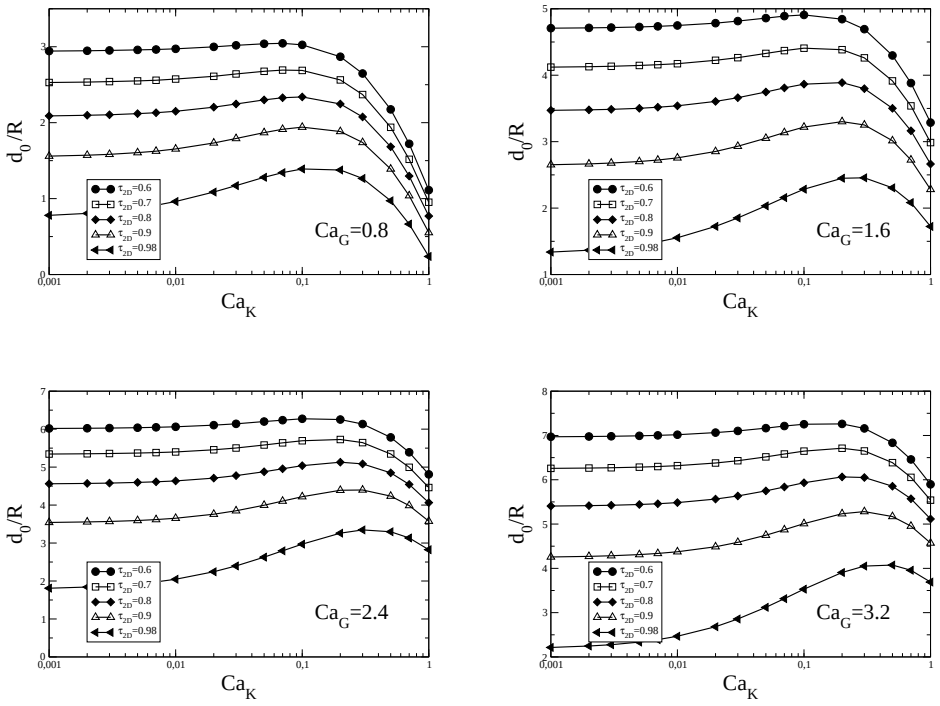


FIG. 2.15 – *Altitude en fonction de la rigidité du substrat. Influence de la gravité.*

Nous pouvons adapter notre calcul de lubrification au cas des vésicules. Il est alors important de tenir compte de l'asymétrie qui va impliquer l'apparition d'une force de portance non nulle, y compris pour les substrats rigides. Par exemple, nous pouvons décrire le profil inférieur de la vésicule par deux branches de paraboles de courbures différentes, le rapport entre les deux courbures étant désigné par un paramètre heuristique ϖ (voir annexe E). Cependant, il est alors difficile de relier ce paramètre au taux de dégonflement, qui est lui une caractéristique intrinsèque de l'objet. Néanmoins, il est certain qu'une telle force existe, et que par conséquent l'existence du maximum peut *a priori* être remise en cause.

Sur les courbes de la figure 2.14, nous avons représenté les altitudes d'équilibre pour différentes valeurs du taux de dégonflement. On voit nettement sur les courbes brutes (à gauche) que le maximum subsiste, y compris pour $\tau_{2D} = 0{,}6$ qui correspond à une vésicule très dégonflée (voir le profil correspondant sur la figure 2.13). Dans le même esprit que dans le cas du cylindre, nous avons cherché à regrouper ces courbes sur une seule courbe maîtresse en choisissant comme paramètre le rapport Ca_K/Ca_G. Un tel collapse est pos-

sible comme nous pouvons le voir sur la figure 2.14 (courbes de droite), ce qui témoigne une fois encore d'une certaine universalité dans ce système.

Nous avons légèrement changé de perspective sur la figure 2.15 où nous avons porté l'altitude d'équilibre à Ca_G constant et τ_{2D} variable. Ici, la similarité des courbes est perdue, mais nous voyons nettement que la position du maximum est très robuste et n'est pas affectée en particulier par le taux de dégonflement de la vésicule.

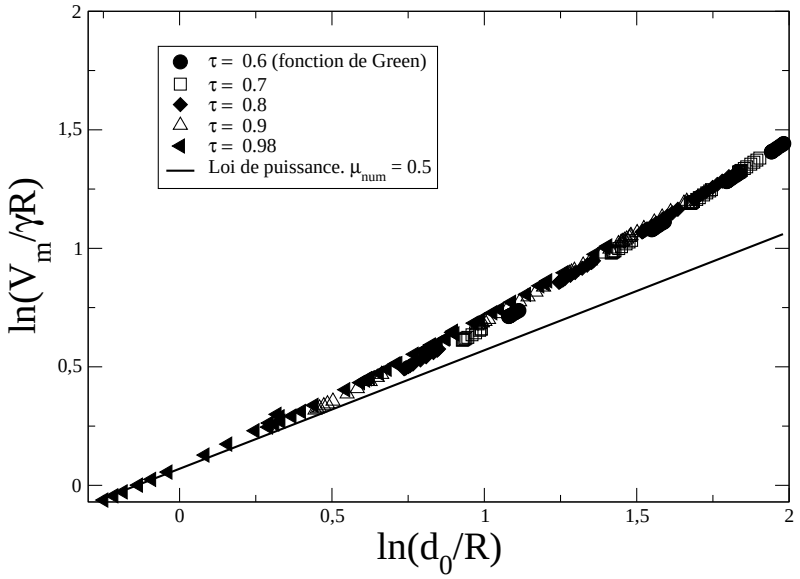


FIG. 2.16 – *Vitesse moyenne V_m pour différents taux de dégonflement (de 0,6 0,98) et différentes valeurs de Ca_G (entre 0,8 et 1,6).*

Il est également possible de mesurer la vitesse moyenne (définie comme pour les vésicules gonflées comme la moyenne des vitesses de rotation de la membrane et de translation de la vésicule) en fonction de l'altitude d'équilibre de la vésicule (figure 2.16). Nous obtenons alors le même type de comportement que dans le cas des cylindres, à savoir un régime asymptotique dans la limite des faibles déformations, qui peut être raisonnablement caractérisé par un exposant $\mu_{num} = 0{,}5$, identique à celui obtenu pour le cylindre (τ_{2D}=1). Dans le cas des vésicules par contre, nous avons un paramètre physique supplémentaire qui est le taux de dégonflement, mais qui ne semble pas intervenir dans la relation vitesse-altitude. Par ailleurs, la lubrification nous donne une contribution au premier ordre pour la force de portance, donnée par :

$$F_{port}^{(0)} \sim \frac{\eta V_m R}{d_0} \tag{2.30}$$

avec un préfacteur qui contient le taux de dégonflement. En injectant $V_m \sim (d_0/R)^{1/2}$, nous obtenons :

$$F_{port}^{(0)} \sim \frac{\eta R^{1/2}}{d_0^{1/2}}. \tag{2.31}$$

Cette relation est valable pour une vésicule **bidimensionnelle** au voisnage d'un substrat **rigide**.

Les lois de puissance pour la force de portance (2.27) et (2.31) sont directement issues d'une analyse de lubrification qui prend en compte la forme de l'écoulement entre le cylindre (ou la vésicule) et le substrat. Cet écoulement serait assez différent à trois dimensions, et il y a de fortes chances pour que les exposants soient différents dans ce cas. Par contre, l'existence de la force de portance n'est pas remise en question, puisqu'elle est basée sur des propriétés de symétries valables aussi bien à deux dimensions qu'à trois.

Pour conclure ce chapitre consacré à quelques propriétés dynamiques des vésicules, il nous a semblé important de commenter les propriétés biomimétiques de ces objets, qui sont souvent mises en avant pour ce qui concerne leurs morphologies d'équilibre. Nous avons cherché à savoir ce qu'il en était réellement dans les situations hors équilibre.

Chapitre 3

Biomimétisme des vésicules ?

Les vésicules sont souvent présentées comme un système modèle pour les globules rouges, ne serait-ce que pour les similitudes de morphologies constatées entre ces deux objets à l'équilibre. Pour conclure cette partie, nous allons dans un premier temps comparer les propriétés mécaniques des globules rouges et des vésicules par une étude de l'importance relative des différents modes de déformations envisageables. Ceci nous permettra de mettre en avant la pertinence du modèle des vésicules dans les situations hors équilibre. Ensuite, nous passerons rapidement en revue les caractéristiques physiques et morphologiques du système circulatoire, en particulier des capillaires, afin de faire le lien avec les problèmes de force de portance présentés dans le chapitre précédent.

3.1 Les globules rouges

Les globules rouges (ou érythrocytes) sont les constituants majeurs du sang. Ils représentent en effet 40 à 50 % du volume sanguin [65]. Les autres cellules importantes sont les globules blancs et les plaquettes, qui à elles deux ne représentent que 1 % des particules sanguines, en volume. Les globules blancs sont des cellules très complexes qui participent à la défense immunitaire de l'organisme. En circulation, ils peuvent être assimilés à des sphères de quelques μm de diamètre. Par contre, une fois adhérés sur les tissus, ils peuvent développer des excroissances spectaculaires appelées pseudopodes. En circulation, toutes ces cellules sont suspendues dans un liquide appelé plasma dont la viscosité est comparable à celle de l'eau (de l'ordre de $1{,}2.10^{-3} Pa.s$) [33]. Le liquide enfermé dans le globule rouge est l'hémoglobine, qui présente un comportement essentiellement newtonien dans les conditions physiologiques [152].

D'un point de vue géométrique, le globule rouge sain a une forme biconcave caractéristique. Son diamètre est d'environ 8 μm, et son épaisseur varie de 1 μm au centre à 2 μm en périphérie. Son volume est de 90 μm^3 et sa surface 140 μm^2.

Le taux de dégonflement correspondant est donc $\tau \sim 0{,}58$. La minimisation fonctionnelle de l'énergie libre d'HELFRICH avec un tel taux de dégonflement conduit à des formes discocytes tout-à-fait similaires, comme on peut le voir sur la figure 3.1 (voir aussi [144]).



FIG. 3.1 – *Sur la figure de gauche (d'après http://www.mpipks-dresden.mpg.de/mpi-doc/julichergruppe) on voit les morphologies typiques des vésicules obtenues par minimisation fonctionnelle d'une énergie libre de type* HELFRICH. *En A, nous avons la forme prolate, en B la forme oblate biconcave, très semblable à celle des globules rouges (figure centrale). En diminuant à l'extrême le taux de dégonflement, on arrive à des formes invaginées semblables à celles de l'image C, et enfin, il est également possible d'obtenir des vésicules présentant un col très marqué, si la courbure spontanée c_0 est non nulle (image D). Sur la figure de droite, nous avons représenté schématiquement la structure membranaire du globule rouge.*

D'un point de vue structurel, la membrane du globule rouge est composée de deux parties (voir figure 3.1). La première est une bicouche lipidique analogue à celle des vésicules. La seconde est un réseau à maille triangulaire de protéines (spectrines) ancrées sur la partie interne de la bicouche. Ce réseau confère au globule des propriétés élastiques particulières. Ainsi, deux types de tensions vont apparaître dans la membrane quand le globule sera soumis à un écoulement hydrodynamique. Le premier sera isotrope et garantira la conservation locale de la surface au niveau de la bicouche de phospholipides. Le second pourra présenter un caractère anisotrope et sera associé au réseau de spectrines [120].

D'un point de vue dynamique enfin, les globules rouges peuvent présenter un mouvement stationnaire de "tank treading" analogue à celui que nous avons présenté pour les vésicules dans le chapitre 1 de cette partie [60]. Ce mouvement est observé si la viscosité du liquide externe est suffisamment importante. Enfin, la déformation de la cellule augmente avec le taux de cisaillement appliqué, ce qui est à mettre en parallèle avec les résultats analytiques de SEIFERT pour les membranes, en présence de fluctuations [145].

Nous pouvons alors reprendre les trois modes de déformation possibles de la membrane et comparer leur importance relative en situation hors

équilibre. Expérimentalement, les mesures des propriétés mécaniques des objets déformables de la taille des globules rouges ou des vésicules sont basées sur la technique d'aspiration par micropipettes, décrite dans [112]. Les différents modules élastiques ainsi mesurés sont regroupés dans le tableau 3.1. Le module de compression est comparable dans les deux cas, ce qui est tout-à-fait normal puisque ce mode est essentiellement supporté par la bicouche lipidique. Le module de cisaillement est nul pour les vésicules dont la membrane peut être assimilée à un liquide bidimensionnel incompressible. Dans le cas des globules rouges, ce n'est plus le cas, à cause du réseau de spectrine. Enfin, le module de courbure est beaucoup plus faible dans le cas des vésicules que dans le cas des globules rouges, ce qui là aussi compréhensible puisque la membrane effective du globule est beaucoup plus épaisse que celle des vésicules, toujours à cause du réseau de spectrines.

Déformation	Globule rouge	Vésicule
Compression	$\chi_e \sim$(0,1-1,0) $J.m^{-2}$	$\chi_e \sim$(0,1-1,0) $J.m^{-2}$
Cisaillement	$\chi_c \sim$(4,0-6,5).$10^{-6} J.m^{-2}$	$\chi_c \sim 0$ $J.m^{-2}$
Courbure	$\kappa \sim$(1,1-1,8).$10^{-15} J$	$\kappa \sim 4.10^{-20}$ J

TAB. 3.1 – *Comparaison des différents modules élastiques pour les globules rouges et les vésicules (d'après [112]).*

On peut alors construire une série de nombres sans dimension qui vont traduire le rapport entre la contrainte appliquée par un écoulement (caractérisé par un taux de cisaillement $\dot{\gamma} \sim 100$ Hz) et la déformabilité du globule ou de la vésicule (de rayon $R \sim 10$ μm), pour chacune de ces déformations. Si ces nombres sont très petits devant l'unité, alors la déformation par le mode correspondant sera négligeable (voir tableau 3.1).

Déformation	Nombre caractéristique	Globule rouge	Vésicule
Compression	$\eta\dot{\gamma}R/\chi_e$	10^{-6}	10^{-6}
Cisaillement	$\eta\dot{\gamma}R/\chi_c$	0,1	∞
Courbure	$\eta\dot{\gamma}R^3/\kappa$	0,1	10^4

TAB. 3.2 – *Importance des modes de déformations pour les globules rouges et les vésicules, comparaison avec les contraintes hydrodynamiques.*

Tout d'abord, le mode de compression est fondamental, aussi bien pour les vésicules que pour les globules rouges. En d'autres termes, dans les deux cas, la surface est une quantité conservée pour la dynamique. Le mode de cisaillement est inexistant pour les vésicules, alors qu'il est relativement important pour les globules rouges. Le mode de courbure est comparable dans le cas des globules

rouges. Par contre, le mode de courbure apparaît complètement négligeable pour les vésicules en situation dynamique. Ainsi, dans un écoulement, ce qui va fixer la forme de la vésicule, ce sont avant tout les contraintes de conservation du volume et de la surface.

Dans nos simulations bidimensionnelles, le mode de cisaillement n'est pas défini, nous n'en parlerons donc pas. Par contre, nous avons travaillé avec un module de courbure de l'ordre de 0,5, tout-à-fait comparable à celui des globules rouges.

Il convient donc de distinguer deux choses. Tout d'abord, le modèle **théorique**. Dans ce cas, la vésicule telle que nous l'avons modélisée apparaît comme une bonne représentation d'un globule rouge. Ensuite, le modèle **expérimental**. Les vésicules apparaissent ici assez mal adaptées pour rendre compte des propriétés mécaniques particulières des globules rouges, sans que cela remette en cause leur étude expérimentale pour elles mêmes.

Enfin, nous pourrions éventuellement raffiner le modèle en incluant des effets dissipatifs dans la membrane, mesurés pour les globules rouges (à deux dimensions, cet effet n'est pas pertinent). En fait, la membrane de ces cellules peut être assimilée à un corps viscoélastique bidimensionnel [10, 151]. Toutefois, dans le cas d'écoulements stationnaires, l'élasticité semble dominer la viscosité [152].

Les vésicules ne constituent pas le seul système modèle pour les globules rouges. Une autre approche, basée sur l'utilisation de capsules, s'est révélée elle aussi particulièrement féconde dans les situations dynamiques. D'un point de vue mécanique, une capsule est une membrane élastique de faible épaisseur. Les contraintes élastiques dont il est question ici sont anisotropes et sont associées au cisaillement dans la membrane. Ces objets ont donné lieu à de nombreuses études depuis les premiers travaux analytiques de Barthès-Biesel & Rallison [8, 9] sur la faible déformation de capsules. Numériquement, les grandes déformations ont pu être prises en compte notamment par Pozrikidis [120]. Dans ces études, le mouvement de "tank treading" a pu être reproduit. Plus récemment, des travaux expérimentaux ont pu être effectués [29, 34]. Une mesure des modules élastique et de cisaillement a pu être réalisée en situation dynamique à partir des oscillations caractéristiques de la capsule [29], par confrontation directe avec les résultats analytiques en faible déformation [10]. Une transition de bascule a été mise en évidence [10, 123]. C'est le rapport de viscosités qui gouverne la transition, qui est tout-à-fait similaire à celle des vésicules. Dans le premier cas, la viscosité de la membrane est prise en compte explicitement dans le calcul. Le seuil de transition est affecté par ce paramètre[1]. Il faut d'ailleurs signaler que dans cette dernière approche, les effets de courbure de type Helfrich ont été introduits et permettent d'obtenir des mor-

1. Il convient de mettre ce résultat en parallèle avec le modèle de Keller & Skalak qui inclue la viscosité membranaire dans les équations par une renormalisation de la viscosité interne du liquide [85]

phologies d'équilibre biconcaves. Par contre, l'incompressibilité caractéristique du globule rouge, due à la membrane lipidique, n'est pas prise en compte dans ce modèle : les variations de surface dans les simulations numériques peuvent atteindre 10 % [123].

3.2 Le système circulatoire

Les globules rouges sont souvent amenés à circuler dans des capillaires sanguins de très petite taille (quelques μm). L'étude *in vivo* de cette circulation a d'ailleurs permis à POISEUILLE d'établir une loi de comportement célèbre reliant la perte de charge au débit dans une conduite cylindrique. Il avait déjà observé que les globules rouges avaient tendance à se regrouper au centre des capillaires et à "glisser" sur une couche assez mal définie au voisinage de la paroi, couche qui selon lui devait favoriser les échanges avec le milieu environnant [119].

Les propriétés mécaniques des parois de vaisseaux sanguins dépendent beaucoup de leur taille et de leur type :

- les **veines** ramènent le sang vers le cœur. Les plus petites (parfois appelées **veinules**, d'un diamètre de 25 μm environ) se trouvent à la jonction de plusieurs capillaires (voir ci-dessous). Elles participent également aux échanges transmembranaires. Le diamètre des veines augmente alors progressivement par fusion, et au-delà de 200 μm, on peut distinguer trois couches dans la membrane veineuse (l'*intima endothéliale*, la *media* et l'*adventicia conjonctive*).
- les **artères** amènent le sang du cœur vers les organes périphériques. Leurs parois sont composées des trois mêmes couches que celles des veines, et peuvent être classées en 3 catégories, les artères élastiques (conduction du sang), qui se ramifient en artères musculeuses, puis en artérioles, d'un diamètre inférieur à 0,3 mm. Dans les plus grosses artères (de l'ordre du cm), le module d'YOUNG de la paroi est de l'ordre de 2.10^5 Pa [174]. L'écoulement peut alors devenir turbulent et la paroi peut se déformer pour réduire la contrainte dans certains cas pathologiques [88]. En moyenne cependant, les artères sont plus petites que les veines.
- les **capillaires** assurent les échanges chimiques entre le sang et les cellules sous-jacentes. Les cellules **endothéliales** tapissent leurs parois, et peuvent jouer un rôle actif dans la régulation des processus intervenant dans le développement de l'arthérosclérose [170]. Le tissu qu'elles composent est assez résistant aux contraintes mécaniques appliquées par l'écoulement, et peut donc être considéré comme rigide.

L'interface entre les cellules endothéliales des capillaires, des artérioles ou des veinules est une zone assez mal définie. Une couche de macromolécules (**gly-**

coprotéines et **protéoglycanes**) tapisse ces parois sur une épaisseur comprise entre 0,5 et 1 μm. Il s'agit du **glycocalyx**, auquel nous allons nous intéresser plus précisément à partir de maintenant. Le glycocalyx joue un rôle important dans la régulation des écoulements sanguins [124], la réponse inflammatoire et la coagulation du sang [125]. C'est d'ailleurs probablement cette couche qui fut observée par POISEUILLE dès 1938.

Ses propriétés mécaniques sont difficiles à évaluer. En général, cette couche est modélisée comme un milieu poreux composé d'un réseau de macromolécules responsables de la réponse élastique, dans lequel circule le plasma [39, 40, 58, 141]. Ces approches sont essentiellement utilisées pour modéliser la morphologie des globules rouges en écoulements confinés ainsi que la rhéologie du sang dans les capillaires[2], donc en situation axisymétrique. A notre connaissance elles n'ont pas été étendues au cas que nous avons étudié qui autorise l'apparition d'une force de portance. Il est toutefois acquis que cette couche est très déformable. En effet, des observations récentes ont montré que les globules rouges sont exclus du glycocalyx quand ils circulent à des vitesses de l'ordre de 20 $\mu m.s^{-1}$, alors qu'ils envahissent totalement le capillaire au repos [171]. A partir du module de cisaillement $\chi_c \sim 10^{-6} J.m^{-2}$ des membranes de globules rouges, et d'une échelle de longueur caractéristique pour les globules rouges de l'ordre du μm, on peut estimer que le module élastique de la couche ne peut être supérieur à quelques $N.m^{-2}$ [125]. Par ailleurs, les contraintes typiques de cisaillement $\eta\dot{\gamma}$ sur les cellules endothéliales qui composent la paroi des capillaires sont de l'ordre de 2 $N.m^{-2}$ [125, 143]. Il est raisonnable de penser que la rigidité de la couche de glycocalyx devra être du même ordre de grandeur. Si elle était beaucoup plus faible, elle ne résisterait pas à la contrainte appliquée. Signalons également qu'une approche analytique de la compression du réseau de protéines donne une valeur moyenne de l'ordre de 10 à 20 $N.m^{-2}$ pour le module élastique global [172].

Pour faire le lien avec notre modèle, deux points restent encore à élucider. Le premier concerne la définition précise du module élastique K que nous avons utilisé, et qui dépend à la fois du module d'YOUNG et du module de POISSON du glycocalyx. Compte-tenu des difficultés évidentes pour accéder à ces paramètres dans un système biologique réel, et compte-tenu également de notre niveau d'approximation, nous allons nous contenter d'assimiler K au module élastique estimé à partir des observations précédemment citées. Par ailleurs, le paramètre Ca_G doit être estimé à partir d'une force de compensation qui n'est certainement pas la gravité dans le cas d'un réseau circulatoire complexe. En fait, cette force de confinement trouve alors son origine dans les interactions avec les autres cellules présentes dans l'écoulement (globules rouges et blancs essentiellement). Etant d'origine hydrodynamique, on s'attend à ce qu'elle se comporte comme $\eta\dot{\gamma}$, avec un préfacteur qui dépendra de la densité de cellules

2. Notamment l'effet FÅHRÆUS-LINDQVIST qui se traduit par une variation de la viscosité effective du sang avec le diamètre du capillaire.

en circulation et de leurs géométries. Dès lors, on peut s'attendre à une valeur de Ca_G de l'ordre de l'unité, qui correspond au choix que nous avons fait dans notre étude.

En prenant $L \sim 1\mu m$ et un module élastique $K \sim 1 - 10 \quad Pa$, on obtient :

$$Ca_K = \frac{L\eta\dot{\gamma}}{RK} \sim \frac{10^{-6}.2}{(1-10).3.10^{-6}} \tag{3.1}$$

soit une valeur de l'ordre de 0,05 à 0,5. Nous avons pris $R \sim (3V/4\pi)^{1/3} = 3$ μm pour le rayon du globule et $\eta\dot{\gamma} \sim 2\ N.m^{-2}$.

Si le cas des sphères peut être perçu comme un bon modèle pour les globules blancs en circulation [175], alors notre modèle nous permet de conclure que la force de portance est optimale dans le régime physiologique. Ainsi, les globules blancs seraient aisément repoussés de la paroi endothéliale par un simple effet mécanique. Par ailleurs, les fortes variations de l'altitude d'équilibre avec notamment les propriétés élastiques du glycocalyx (voir courbe 2.8, page 143) nous indiquent que toute modification dans la rigidité du substrat pourrait avoir de sérieuses conséquences sur la distance du globule blanc à la paroi. Il est tentant de penser alors aux premières phases de la réponse immunitaire, dans lesquelles les leucocytes doivent s'approcher des cellules endothéliales avant de pénétrer dans les tissus. En particulier, il est bien connu que les globules blancs ont plutôt tendance à adhérer aux parois des veinules post-capillaires qu'à celles des artérioles [175]. Or, les contraintes de cisaillement sont plus faibles dans les veinules : dans nos notations, cela revient à dire que Ca_K est plus faible, et par conséquent, nous pouvons imaginer que la force de répulsion diminue elle aussi (voir figure 2.8). Il convient malgré tout de rester très prudent. En effet, il est certain que les processus purement mécaniques que nous venons de décrire peuvent avoir un rôle non négligeable dans l'initiation de la réponse immunitaire, mais il ne faut pas oublier qu'il s'agit en réalité d'un processus extrêmement complexe faisant intervenir de nombreux effets biochimiques [175].

De la même façon, on pourrait dire que les globules rouges subissent une force importante et quasiment constante, indépendamment de l'élasticité du glycocalyx ou de la contrainte de cisaillement locale (d'après les courbes de la figure 2.14 avec $\tau_{2D} = 0{,}6$). En d'autres termes, ces cellules n'auront jamais tendance à s'approcher de la paroi, sauf dans les cas d'extrême déformabilité ($Ca_K \geq 1$). Dans ce cas, l'intégrité du glycocalyx pourrait raisonnablement être remise en cause. Mais là encore, la plus grande prudence est nécessaire.

Enfin, et de façon peut-être plus anecdotique, signalons que certains composés chimiques présents dans les glaces précométaires possèdent la propriété de s'autoassembler en structures vésiculaires qui pourraient avoir joué un rôle dans l'émergence de la vie [52]. Mais ceci est un vaste débat qui dépasse encore

plus largement le contexte de cette thèse...

Quatrième partie

Vers une prise en compte des effets collectifs ?

Chapitre 1

Rhéologie des liquides diphasiques

Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction, notre travail est motivé par l'importance des interfaces dans le comportement mécanique des liquides diphasiques. Après avoir considéré certains aspects dynamiques d'objets individuels, isolés, tels que les gouttes viscoélastiques (partie II) ou les vésicules sous cisaillement (partie III), il nous a semblé naturel de prolonger ces études par une investigation des effets collectifs. Ce chapitre est essentiellement qualitatif, et largement préliminaire, du fait de la complexité du système et de la grande quantité de paramètres pertinents qui interviennent, y compris dans les systèmes bidimensionnels les plus simples.

Nous donnerons donc un rapide aperçu du comportement sous cisaillement d'un mélange de deux liquides immiscibles. Dans un premier temps, nous posons les paramètres sans dimension pertinents pour le problème (paragraphe 1.1), puis nous définissons les quantités rhéologiques mesurables (paragraphe 1.2). Enfin, nous présentons quelques résultats numériques (paragraphe 1.3).

Ce chapitre nous permettra surtout d'illustrer la capacité des modèles de champ de phase à prendre en compte les phénomènes complexes de coalescence et de rupture qui apparaissent au sein du liquide [97], et doit être perçu davantage comme une ouverture que comme une fin en soi.

1.1 Position du problème et mise en équation

Nous considérons donc un liquide diphasique composé de deux phases visqueuses A et B immiscibles. Pour simplifier l'étude, nous supposons que les viscosités et les densités de ces deux composants sont les mêmes, et nous notons Σ la tension de surface entre A et B. Nous nous plaçons dans une géométrie bidimensionnelle. Les équations dynamiques pour l'hydrodynamique sont similaires à celles que nous avons utilisées pour les gouttes visqueuses dans la première partie, et nous aurons donc :

$$\begin{cases} \epsilon_v \partial_t \mathbf{v} = \eta \Delta \mathbf{v} - \nabla P - \Sigma c(\theta) \nabla \theta \\ \nabla . \mathbf{v} = 0 \\ \partial_t \theta = -\mathbf{v} . \nabla \theta - \Gamma^{-1} \Delta \left[\theta (1 - \theta^2) + \epsilon^2 (\Delta \theta - 2c(\theta) |\nabla \theta|) \right] \end{cases} \tag{1.1}$$

avec η la viscosité des deux liquides en présence. Les notations restent les mêmes que dans les chapitres précédents. La principale différence concerne l'équation du champ de phase : pour tenir compte proprement des processus de réorganisations topologiques en conservant une fraction surfacique constante au cours de la dynamique, nous avons remplacé l'équation de type Ginzburg-Landau par celle de Cahn-Hilliard, qui est conservative.

Un écoulement de cisaillement est imposé au liquide, qui est confiné entre deux surfaces rigides séparées par une distance L, en translation uniforme l'une par rapport à l'autre. Le taux de cisaillement appliqué est donné par $\dot{\gamma}$, et par conséquent la vitesse de la plaque supérieure, dans le référentiel de la plaque inférieure, est donné par $\dot{\gamma} L$. Sur les plaques, nous imposons des conditions de non glissement, et des conditions aux limites périodiques sur les deux dernières frontières du domaine. Nous noterons ν la **fraction surfacique** de A dans B, définie comme le rapport entre la surface occupée par le liquide A (par exemple) et la surface totale de liquide dans le domaine de résolution.

Pour adimensionner correctement nos équations, il convient de définir une longueur caractéristique. La distance entre les plaques ne nous semble pas pertinente puisqu'elle ne permet pas de traduire correctement la compétition entre les effets capillaires et la contrainte de cisaillement qui a lieu à l'échelle des gouttes. Par contre, si la fraction surfacique est suffisamment faible, c'est-à-dire si les effets de couplage ne sont pas trop importants, la taille des gouttes dans l'état stationnaire sera naturellement de l'ordre de $\Sigma / \eta \dot{\gamma}$, que nous choisissons comme longueur de référence[1]. En choisissant $\dot{\gamma}^{-1}$ comme échelle de temps, nous obtenons alors facilement :

$$\begin{cases} Re \ \partial_t \mathbf{v} = \Delta \mathbf{v} - \nabla P - c(\theta) \nabla \theta \\ \nabla . \mathbf{v} = 0 \\ \partial_t \theta = -\mathbf{v} . \nabla \theta - \Gamma^{-1} \Delta \left[\theta (1 - \theta^2) + \epsilon^2 (\Delta \theta - 2c(\theta) |\nabla \theta|) \right] \end{cases} \tag{1.2}$$

Le nombre de Reynolds Re est ici donné par $\dfrac{\epsilon_v \Sigma^2}{\eta^3} \dot{\gamma}$. Comme dans les chapitres précédents, ce nombre est fixé à 10^{-2} pour rester dans un régime purement visqueux. L'écoulement imposé est alors simplement :

1. Ainsi, le nombre capillaire à cette échelle sera nécessairement égal à 1.

$$\begin{cases} v_x = y \\ v_y = 0 \end{cases} \tag{1.3}$$

Le taux de cisaillement est alors contenu dans la distance entre les deux plaques, qui, dans notre système d'unités, est donnée par :

$$\tilde{L} = \frac{L\Sigma}{\eta\dot{\gamma}}. \tag{1.4}$$

Ainsi, augmenter $\tilde{L}$ revient soit à augmenter L, soit à diminuer le taux de cisaillement appliqué $\dot{\gamma}$. Dans nos simulations cependant, nous laissons ce paramètre fixe, par souci de simplicité. Le seul paramètre variable sera donc la fraction surfacique ν. Une configuration typique du champ de phase pour $\nu = 0{,}4$ est représentée sur la figure 1.1, avec $\tilde{L} = 4$.

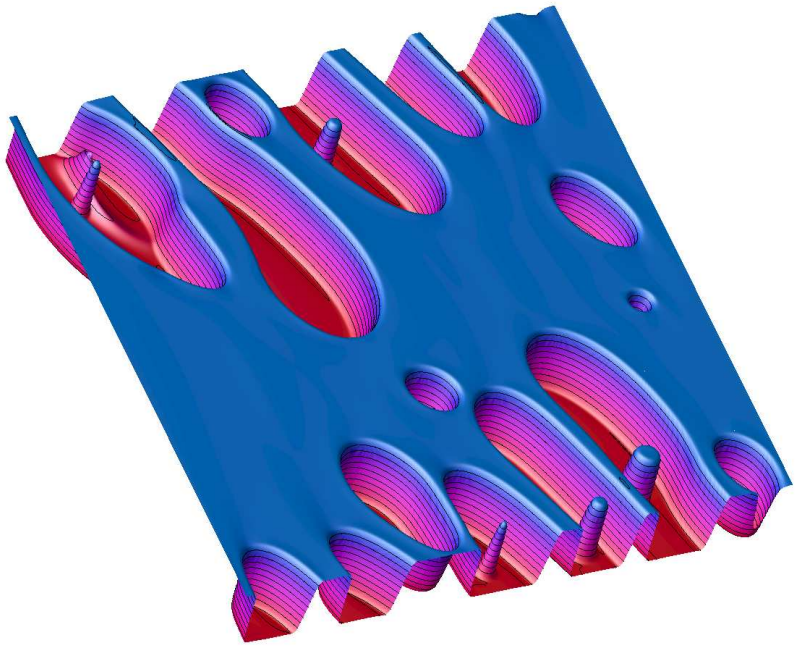


FIG. 1.1 – *Illustration de la configuration du champ de phase pour une fraction surfacique $\nu = 0{,}4$, à $t = 45\,\dot{\gamma}^{-1}$ (état stationnaire).*

Un certain nombre de paramètres peuvent être définis pour caractériser le comportement mécanique du mélange.

1.2 Fonctions rhéologiques mesurables

Comme nous l'avons indiqué dans l'introduction générale de ce document, même si les deux liquides en présence sont newtoniens, le mélange n'a aucune

raison de l'être. En effet, la présence d'interfaces permet un stockage d'énergie sous forme de tension de surface, et un comportement viscoélastique peut donc être attendu.

Nous l'avons vu dans la première partie, les fonctions rhéologiques caractéristiques d'un liquide sont au nombre de trois : la viscosité de cisaillement η_{cis}, et les premières différences de contraintes normales N_1 et N_2 (voir page 40). A deux dimensions cependant, la seconde différence de contraintes normales n'est pas définie. Pour pouvoir mesurer ces quantités, qui sont cruciales dans la caractérisation du liquide, il convient de se donner un tenseur des contraintes équivalent qui permette de tenir compte de l'anisotropie de l'interface et des contraintes dans le liquide. En particulier, il est possible de montrer que les effets capillaires peuvent être représentés par un tenseur $\mathbf{T}_{cap}$ défini par [11, 137, 142] :

$$\mathbf{T}_{cap} = \Sigma \left(\mathbf{I} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} \right) \delta_{\partial S} \tag{1.5}$$

avec $\mathbf{I}$ le tenseur unité, $\mathbf{n}$ le vecteur normal à l'interface au point considéré et $\delta_{\partial S}$ la distribution de DIRAC portée par l'interface. Il est alors possible de montrer que [142] :

$$\nabla . \mathbf{T}_{cap} = 2c\Sigma \mathbf{n} \delta_{\partial S}. \tag{1.6}$$

Dès lors, connaissant la configuration géométrique de l'interface à chaque instant (par le biais du champ de phase), et moyennant une régularisation de la distribution de DIRAC identique à celle que nous avons déjà introduite par ailleurs, nous pouvons définir un **tenseur des contraintes global** que nous noterons $\boldsymbol{\sigma}^{eq}$:

$$\boldsymbol{\sigma}^{eq} = 2\eta \mathbf{D} + \mathbf{T}_{cap}. \tag{1.7}$$

En pratique, nous mesurons plutôt des quantités moyennées spatialement, et finalement, nous avons :

$$\langle \boldsymbol{\sigma}^{eq} \rangle = \frac{1}{S} \int_S \left(2\eta \mathbf{D} + c\Sigma \nabla \theta \right) dS \tag{1.8}$$

avec S la surface sur laquelle nous résolvons effectivement nos équations (nous travaillons à deux dimensions). Dès lors, les fonctions rhéologiques seront classiquement définies par :

$$\eta_{cis} \left(\dot{\gamma} \right) = \frac{\langle \sigma_{12}^{eq} \rangle}{\dot{\gamma}} \tag{1.9}$$

et

$$N_1 \left(\dot{\gamma} \right) = \frac{\langle \sigma_{11}^{eq} \rangle - \langle \sigma_{22}^{eq} \rangle}{\dot{\gamma}^2}. \tag{1.10}$$

Les équivalents adimensionnés sont naturellement donnés par :

$$\begin{cases} \tilde{\eta}_{cis} = \dfrac{\eta_{cis}}{\eta} \\ \\ \tilde{N}_1 = \dfrac{N_1 \dot{\gamma}}{\eta} \end{cases} \tag{1.11}$$

Enfin, nous pouvons mesurer le nombre de gouttes à chaque instant de la simulation grâce à un algorithme initialement développé par OSHEN et KOPPELMAN dans le cadre de la percolation [158][2], et ensuite utilisé dans le cadre de l'apparition de structures cellulaires en solidification [83]. Sans entrer dans les détails numériques, cet algorithme permet d'obtenir à la fois le nombre de "clusters" ou gouttes pour une configuration donnée, et la distribution en tailles. Ces paramètres sont importants pour les applications pratiques puisqu'ils vont déterminer, par exemple, les propriétés élastiques d'un composé plastique obtenu par refroidissement d'un mélange de deux fondus de polymères, ou les rendements de combustion lors de l'injection d'essence dans un moteur...

1.3 Résultats numériques

Nous procédons de la façon suivante : une configuration initiale aléatoire est engendrée pour le champ de phase, puis laissée libre de relaxer, sans écoulement, jusqu'à ce que le profil de θ soit stabilisé. A partir de cet instant, un cisaillement est appliqué au système, ce qui définit l'origine des temps. Les fonctions rhéologiques ainsi que la distribution en taille des gouttes ou domaines sont alors mesurées numériquement. Pour ce qui concerne les conditions aux limites, nous imposons une absence de glissement sur les parois horizontales et des conditions périodiques sur les frontières verticales. Pour le champ de phase, nous imposons une zone de mouillage arbitraire sur les parois, qui favorise la présence d'un des deux liquides à leur contact. En pratique, il suffit d'ajouter un potentiel de répulsion à courte portée pour éviter le mouillage partiel de l'autre liquide (l'épaisseur est de quelques mailles, ce qui est raisonnable puisque les résultats que nous présentons ici sont obtenus avec des grilles de 400*400 nœuds).

Nous voyons sur la figure 1.3 l'évolution typique du mélange pour $\nu = 0{,}5$ et $\tilde{L} = 4$. Les vignettes correspondent aux temps suivants, en unité $\dot{\gamma}^{-1}$:

0	10
20	30
40	50

2. Nous avons eu connaissance de cet algorithme par l'intermédiaire de Klaus KASSNER.

La configuration initiale est très finement dispersée. Aux temps courts, les processus de coalescences dominent et conduisent à la formation de domaines qui envahissent tout l'espace. Une structuration en bande est amorcée, comme cela avait d'ailleurs pu être mis en évidence par ailleurs (avec une méthode assez semblable à la notre) [137]. Plusieurs échelles de longueurs sont clairement présentes dans le système.

Distribution en taille

Sur la figure 1.4, nous voyons l'évolution du nombre de gouttes pour différentes valeurs de ν (entre 0,01 et 0,5). Comme nous venons de le remarquer, les processus de coalescences sont toujours dominants aux temps courts (le nombre total de gouttes diminuant au cours du temps). La pente initiale des courbes n'est pas une fonction monotone de la fraction surfacique, et nous voyons que les coalescences sont les plus rapides pour des valeurs de ν voisines de 0,2-0,3. Des processus de ruptures occasionnelles sont alors nettement visibles, notamment pour les valeurs élevées de ν (voir encart de la figure 1.4).

Pour $\nu = 0{,}01$, nous avons représenté sur la figure 1.5 l'évolution de la répartition en taille des gouttes du système. Cette fois encore, nous constatons que les premiers instants de la dynamiques sont caractérisés par une forte population de gouttes de petites tailles, qui finissent par fusionner. Par contre, aucune taille caractéristique ne se détache dans l'état stationnaire. Il serait intéressant à ce niveau d'effectuer une moyenne statistique sur les configurations initiales, mais nous y reviendrons dans la conclusion finale et la présentation des perspectives.

Nous avons pu également mesurer les fonctions rhéologiques introduites dans le paragraphe précédent.

Viscosité de cisaillement

Sur la figure 1.6, nous voyons l'évolution temporelle de la viscosité de cisaillement, pour différentes valeurs de ν (toujours entre 0,01 et 0,5). Après une première phase caractérisée par une forte augmentation de ce paramètre (ce qui est normal puisque nous avons un état initial très éloigné de la configuration stationnaire : voir figure 1.3), un état stationnaire est atteint, avec malgré tout de fortes fluctuations (surtout aux valeurs élevées de ν). Ces fluctuations sont dues essentiellement à l'évolution permanente de la configuration géométrique des interfaces dans la zone de mesure. En d'autres termes, des processus permanents de fragmentations et de coalescences vont avoir lieu dans le liquide, comme nous pouvons d'ailleurs le voir sur la figure 1.3. Naturellement, ces recombinaisons seront d'autant plus importantes que la fraction surfacique sera élevée. Pour les valeurs faibles de ν, la viscosité de cisaillement ne diffère pas

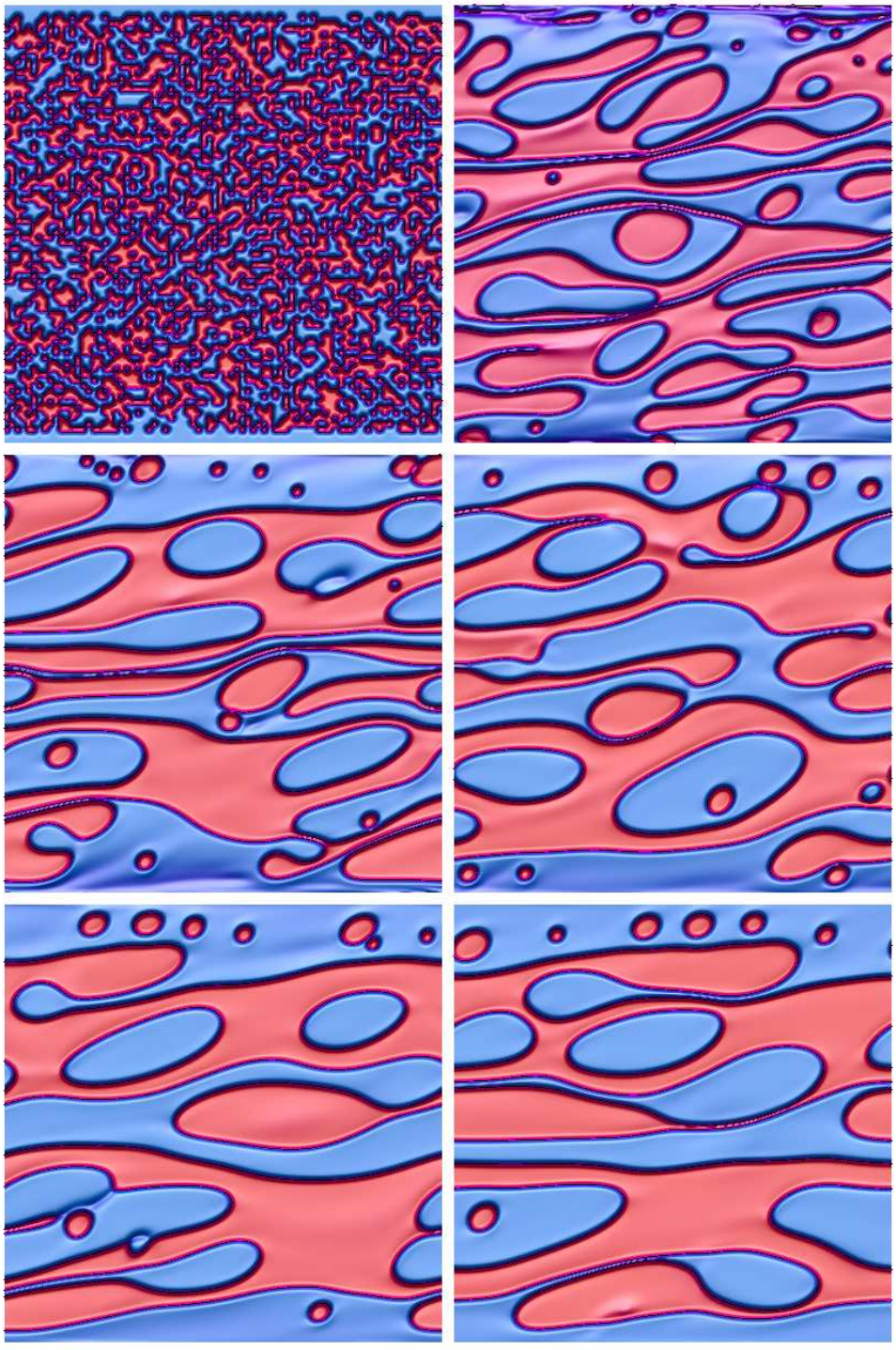


FIG. 1.2 – *Evolution temporelle à partir d'une configuration initiale aléatoire et application d'un cisaillement constant ($\nu = 0.5$). Les figures correspondent aux intervalles de temps successifs $t = 0$, 10, 20, 30, 40 et 50 $\dot{\gamma}^{-1}$.*

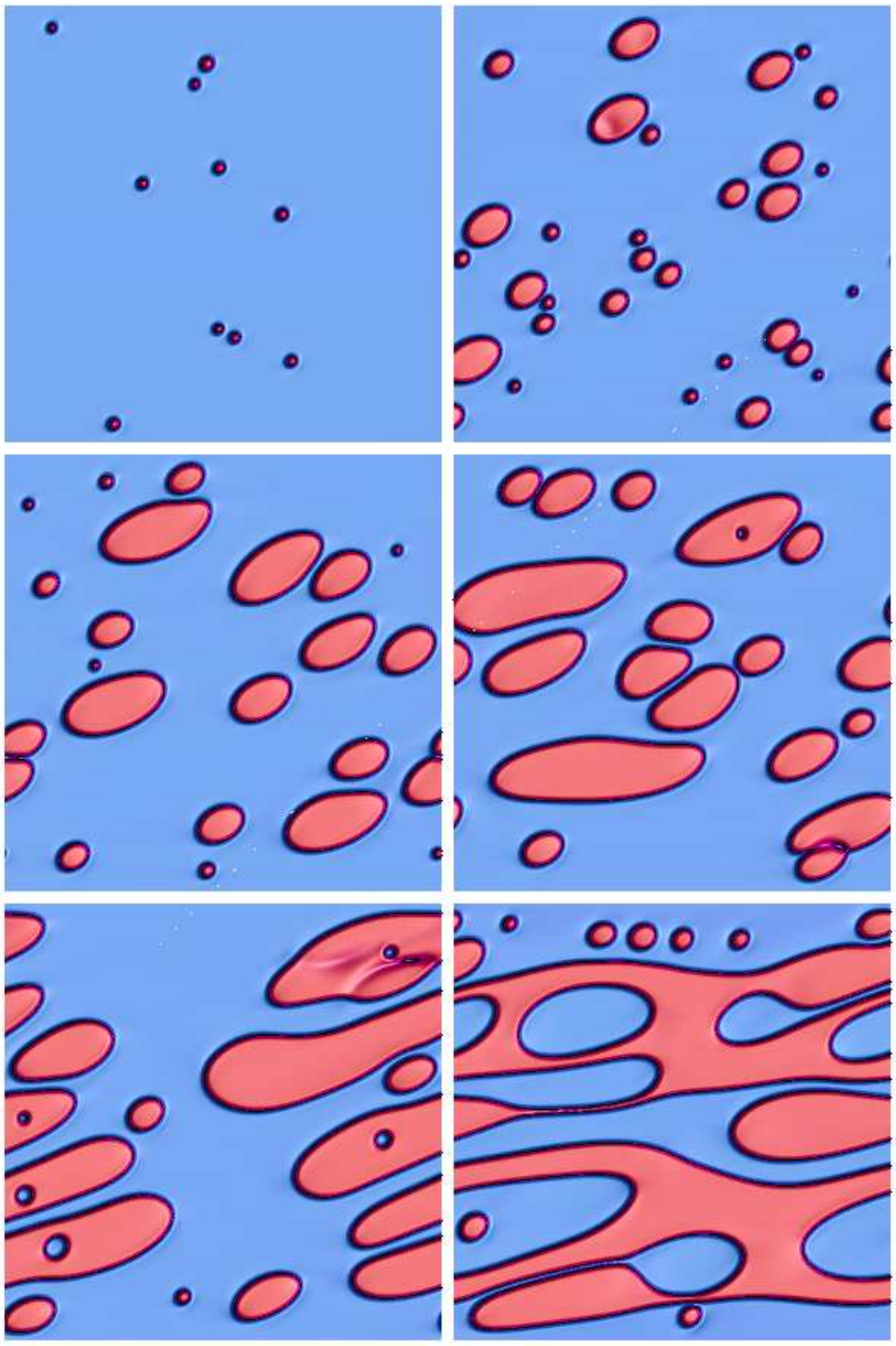


FIG. 1.3 – *Configuration typique du système dans l'état stationnaire (correspondant à 45 $\dot{\gamma}^{-1}$) pour différentes valeurs de la fraction surfacique (dans l'ordre 0,01, 0,1, 0,2, 0,3, 0,4 et 0,5).*

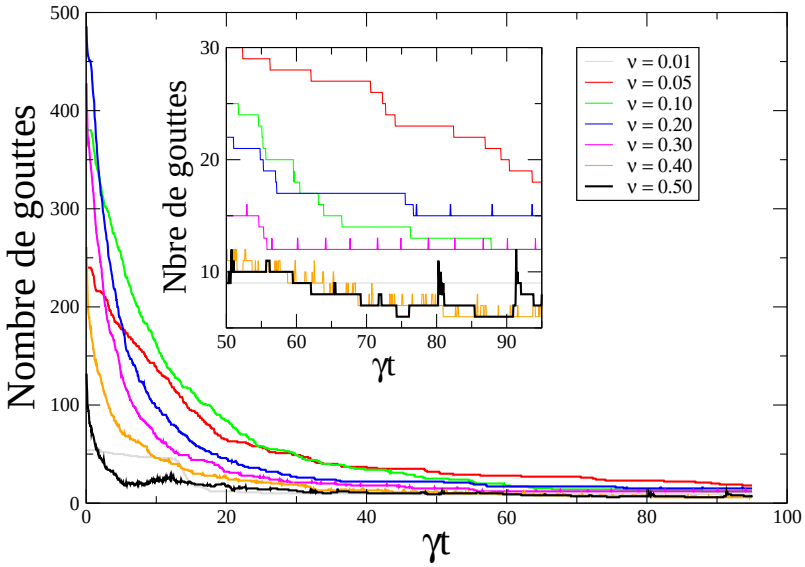


FIG. 1.4 – *Evolution du nombre de gouttes dans le système au cours du temps, pour ν variable entre 0,01 et 0,5. En encart : zoom sur la partie finale.*

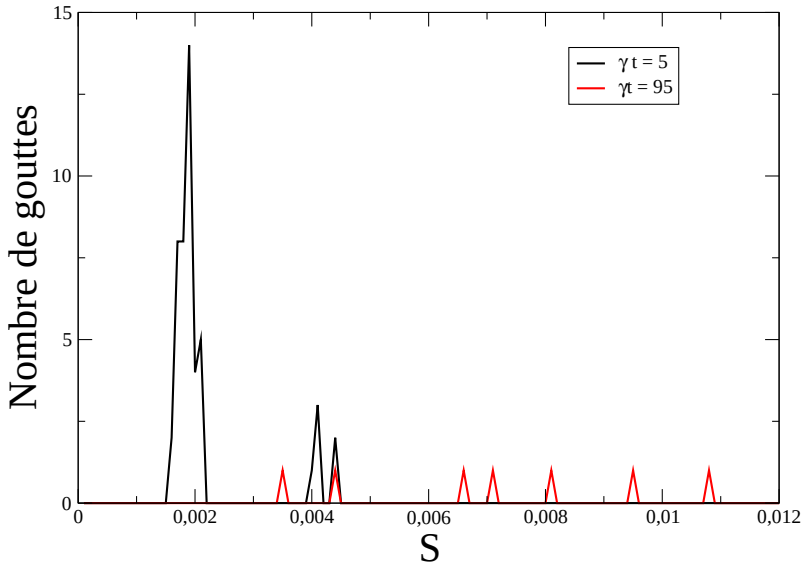


FIG. 1.5 – *Distribution en taille des gouttes pour $\nu = 0{,}01$, à $t = 5\,\dot{\gamma}^{-1}$ et 95 $\dot{\gamma}^{-1}$.*

notablement de la viscosité des deux liquides du mélange, ce qui est tout-à-fait intuitif. Le mélange n'est alors pas vraiment différent des liquides purs A ou B.

Ce qui l'est moins par contre, c'est que la valeur moyenne de η_{cis} (moyennée entre $t \sim 50\ \dot{\gamma}^{-1}$ et $t \sim 95\ \dot{\gamma}^{-1}$ qui correspond à la fin de notre simulation) présente une saturation marquée au-delà de ν proche de 0,30. Sur la figure 1.7, nous avons représenté cette valeur moyenne en fonction de la fraction surfacique. Les barres d'erreur représentent la valeur de $(\max(\eta_{eff}/\eta) - \min(\eta_{eff}/\eta))/\sqrt{2}$, pour $t > 50\dot{\gamma}^{-1}$, et sont une bonne représentation des fluctuations dans le système. La nature physique de cette saturation n'est pas clairement identifiée. Par contre, aux faibles fractions surfaciques, un comportement linéaire est clairement mis en évidence, caractérisé par une pente de 1,45.

Sans anticiper sur la conclusion de ce travail, nous pouvons d'ores et déjà souligner l'intérêt que représenterait une telle simulation à trois dimensions, ne serait-ce que pour vérifier la linéarité de cette viscosité avec la fraction volumique, et, le cas échéant, pour confronter la valeur obtenue pour la pente avec les 5/2 de la loi d'EINSTEIN pour les suspensions de sphères dures [54]. Nous pouvons bien sûr nous attendre à une pente différente : les conditions aux limites sont beaucoup moins restrictives pour les émulsions que pour les sphères dures.

Enfin, il est légitime de s'attendre à ce que $\nu = 0{,}5$ correspondent à un extremum local, par symétrie entre les liquides A et B.

Première différence de contraintes normales

De la même façon, la première différence de contraintes normales présente une première phase caractérisée par une augmentation très marquée au fortes fractions surfaciques. Un maximum est encore visible, mais pour $\nu = 0{,}5$ uniquement. Cette fois encore les fluctuations sont importantes.

Sur le graphe 1.9, nous voyons la dépendance de N_1 avec la fraction surfacique (comme pour la viscosité apparente, nous avons effectué une moyenne temporelle entre $t \sim 50\ \dot{\gamma}^{-1}$ et $t \sim 95\ \dot{\gamma}^{-1}$). Cette fois le comportement est bien monotone, avec $N_1 \to 0$ aux faibles fractions surfaciques (cette fois encore ce résultat est intuitif puisqu'un liquide simple ne présente pas de différence de contraintes normales).

Enfin, nous montrons sur la figure 1.3 différentes configurations typiques obtenues pour $t = 45\ \dot{\gamma}^{-1}$, au début du développement de l'état stationnaire, pour différentes valeurs de ν. Nous voyons clairement que la connectivité des domaines devient très importante quand les liquides A et B occupent approximativement la même surface (ν =0,5).

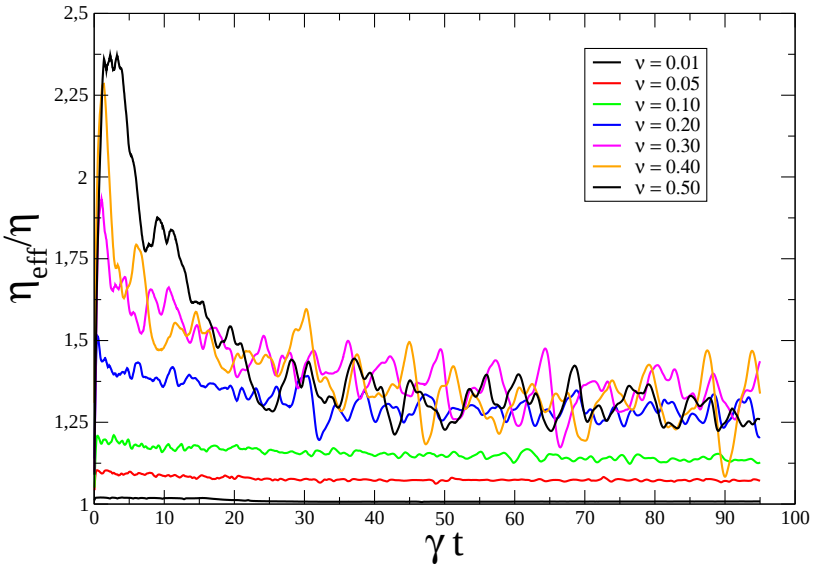


FIG. 1.6 – *Viscosité apparente : évolution au cours du temps.*

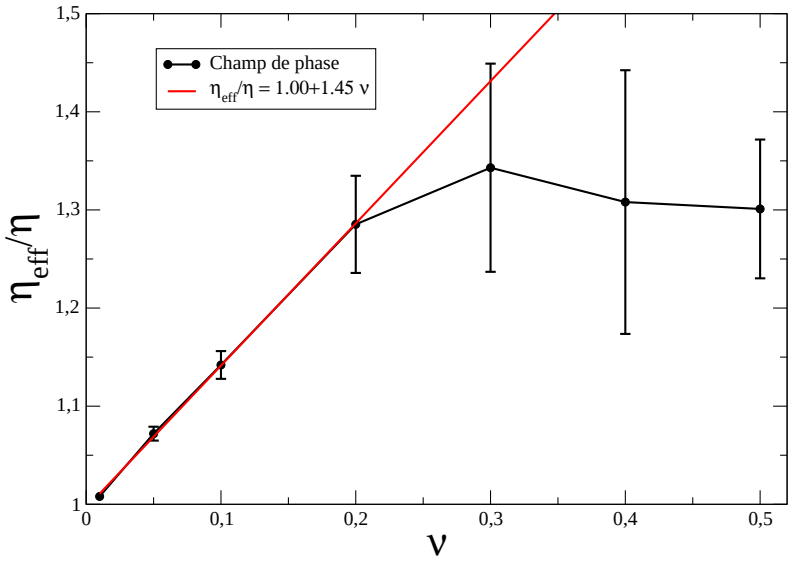


FIG. 1.7 – *Viscosité apparente en fonction de la fraction surfacique. Les barres d'erreurs correspondent à* $(\max(\eta_{eff}/\eta) - \min(\eta_{eff}/\eta))/\sqrt{2}$, *pour* $t > 50\dot{\gamma}^{-1}$.

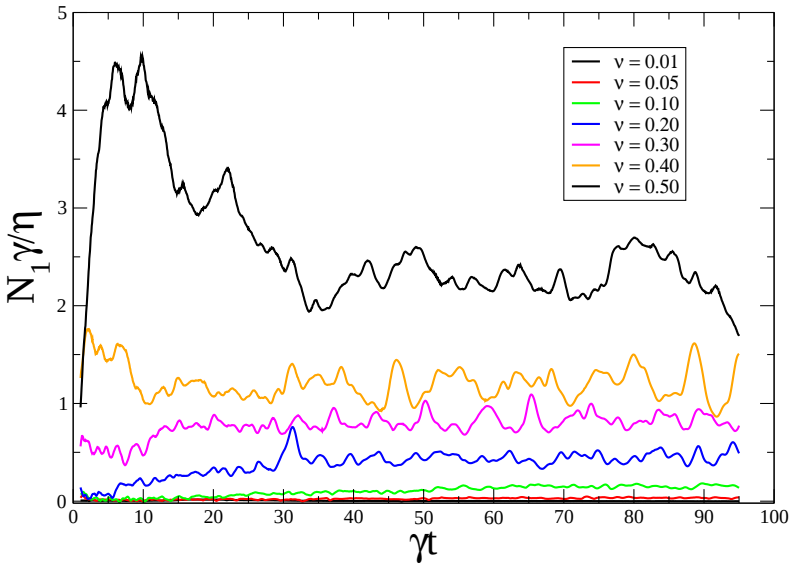


FIG. 1.8 – *Première différence de contraintes normales : évolution au cours du temps.*

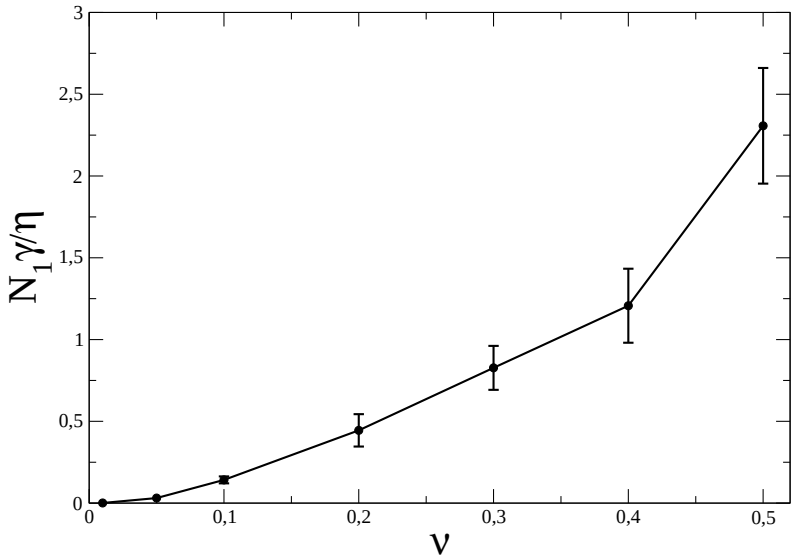


FIG. 1.9 – *Première différence de contraintes normales en fonction de la fraction surfacique. Les barres d'erreur sont obtenues de la même façon que pour la viscosité effective.*

Conclusions et perspectives

Deux systèmes assez éloignés ont été étudiés dans ce travail. Les différences portaient à la fois sur la physique de l'interface (tension de surface dans le cas des gouttes, énergie de courbure d'Helfrich et contrainte d'incompressibilité pour les vésicules) ainsi que sur l'écoulement appliqué (élongation et cisaillement).

Dans le cas des gouttes en élongation, nous avons vu que l'introduction de comportements viscoélastiques dans le liquide interne, par le biais d'une équation constitutive de type Oldroyd B, se traduit par une modification de la morphologie de la goutte. Le paramètre classiquement utilisé pour décrire la déformation de la goutte n'est plus suffisant, et une étude de la courbure moyenne le long de l'axe d'élongation est nécessaire. Ainsi, nous avons pu constater que ce paramètre est profondément affecté par la viscoélasticité. Au-delà du seuil de stabilité, qui ne dépend pas de la viscoélasticité de la solution, nous avons mis en évidence un comportement non monotone assez surprenant pour la dynamique de rupture. Cette fois, c'est la courbure gaussienne dans le plan de symétrie perpendiculaire à l'axe d'élongation qui est le paramètre important.

Dans le cas des vésicules sous cisaillement, nous avons mis en évidence numériquement la transition de bascule, gouvernée par le rapport de viscosité et le taux de dégonflement. Cette étude nous a permis de quantifier les erreurs liées à la régularisation de l'interface par la méthode du champ de phase. Dans une seconde étude, nous avons mis en évidence l'apparition d'un maximum dans la force de portance élasto-hydrodynamique qui s'exerce sur une vésicule non dégonflée soumise à un cisaillement au voisinage d'une paroi déformable. Un calcul perturbatif en régime de lubrification a également été proposé. Enfin, nous avons vu que l'amplitude de ce maximum diminue fortement avec le taux de dégonflement, sans toutefois disparaître. Nous avons alors conclu en montrant la pertinence du modèle des vésicules pour la description mécanique des globules rouges.

Malgré les fortes différences déjà évoquées, des similitudes se dégagent dans le comportement dynamique de ces deux systèmes.

Dans le cas des gouttes en élongation en effet, nous avons une transition

entre deux régimes, stationnaire et instationnaire. Cette transition est gouvernée par un seul nombre sans dimension, le nombre capillaire, qui traduit la compétition entre la contrainte appliquée par l'écoulement et la résistance due à la tension de surface. La présence de viscoélasticité affecte naturellement la morphologie des états stationnaires et la dynamique de déstabilisation, mais finalement, la transition entre les deux régimes est assez universelle puisque les seuils de rupture ne sont pas affectés par la viscoélasticité. Dans cette transition, nous avons qu'un paramètre pertinent est la courbure gaussienne dans le plan de symétrie de la goutte. Nous avons mis en évidence un comportement parabolique au voisinage du seuil, caractéristique d'une bifurcation col-nœud pour employer le vocabulaire propre aux systèmes dynamiques.

Pour les vésicules, une transition de nature très similaire existe sous cisaillement. Les détails de cette transition sont plus complexes, et dépendent cette fois de deux nombres sans dimension, le taux de dégonflement et le rapport de viscosité. Le comportement dynamique est rendu plus compliqué par la nature du cisaillement qui peut être considéré comme la superposition d'un écoulement d'élongation et d'une rotation uniforme. La variable pertinente est alors l'angle d'inclinaison de la vésicule, et il bien connu qu'elle présente elle aussi une variation parabolique au voisinage du seuil.

Pour ce qui est des perspectives, nous pouvons séparer les aspects purement numériques des problématiques, plus fondamentales pour nous, qui concernent le rôle des interfaces en mécanique des fluides.

La méthode du champ de phase, bien que très prometteuse puisqu'elle permet la modélisation de phénomènes viscoélastiques en présence de frontières libres, doit être considérée avec circonspection dans le cadre d'études réellement quantitatives. Deux aspects doivent être pris en compte pour rendre cette approche à la fois plus précise et plus efficace.

Le premier est analytique : une étude précise des effets liés à la régularisation de l'interface, notamment dans l'équation de Navier-Stokes et dans l'expression de la force membranaire, doit être effectuée. Il est possible en principe d'annuler les effets de ϵ ordre par ordre grâce à l'introduction de termes correctifs similaires à celui proposé par Folch et que nous avons utilisé dans nos simulations. Il s'agit naturellement d'un travail fastidieux, mais qui ne doit pas nécessairement être mené à tous les ordres : il serait inutile en effet d'utiliser des termes correctifs à l'ordre n si la précision de la discrétisation des opérateurs différentiels n'est pas d'ordre $n+1$ au moins...

Le second est plutôt de nature numérique. Pour permettre une prise en compte réellement précise des phénomènes de rupture et de coalescence, notamment dans le cas des gouttes ou de liquides diphasiques, une description fine des phénomènes à petite échelle est nécessaire. Un maillage adaptatif sur l'interface est donc nécessaire, ce qui en principe est relativement facile à

mettre en œuvre, le gradient du champ de phase pouvant donner directement une information pertinente sur la localisation d'un éventuel raffinement de maillage. Naturellement, la complexité algorithmique n'est pas facile à intégrer, surtout dans les problèmes de mélange où les interfaces envahissent rapidement tout le domaine de calcul... Dans le même ordre d'idée, le passage à une géométrie tridimensionnelle est nécessaire en vue d'applications industrielles.

D'un point de vue plus fondamental, il est bien évident que de nombreuses questions sont restées en suspens. Dans le cas des gouttes, le contraste de viscosité n'a pas été modifié dans nos simulations. Or il est bien établi que ce paramètre a une influence non négligeable sur les seuils de rupture de gouttes newtoniennes. Nous savons également que le mécanisme de rupture est beaucoup plus complexe sous cisaillement qu'en élongation. Les différences de morphologies constatées en élongation au delà du seuil, suivant la valeur du nombre de DEBORAH pourraient avoir un impact important sur l'importance relative (au niveau de la dynamique de la goutte) des composantes rotationnelles et élongationnelles du cisaillement. Une prise en compte réaliste de ces phénomènes demande néanmoins un important effort numérique puisque la géométrie est dans ce cas complétement tridimensionnelle.

Dans le cas des vésicules, nous nous sommes limités au régime newtonien pour le liquide interne. Introduire des effets viscoélastiques ne pose pas de problème technique particulier, par contre nous sommes convaincus qu'une telle sophistication ne modifierait pas fondamentalement la dynamique, l'écoulement interne étant essentiellement rotationnel : les polymères seraient finalement assez peu déformés.

Par contre, il serait intéressant d'introduire une description mécanique plus réaliste de la paroi déformable, en s'inspirant des travaux déjà effectués qui assimilent la couche de glycocalyx à un milieu poreux. Le passage à trois dimensions est lui aussi important en vue de confrontation directe avec les résultats expérimentaux. La modification de la force de portance en situation instationnaire (à fort rapport de viscosité) n'a pas été envisagé. Il est pourtant clair que cette paroi va modifier les seuils de transition vers le mouvement de bascule, mais de quelle manière.

Enfin, et c'est sans doute le plus important, les effets collectifs, dont la prise en compte a été ébauchée à la fin de ce travail, doivent être étudiés plus systématiquement. La distribution statistique de la taille des gouttes, l'importance relative des processus de fragmentations et de coalescences en fonction du rapport de viscosités, l'existence d'un tenseur des contraintes global et sa dépendance vis-à-vis de la fraction surfacique, de la tension de surface, etc... sont autant de questions importantes dont l'étude numérique au moins qualitative est possible avec les méthodes numériques de type champ de phase.

De la même façon, la rhéologie d'une suspension de vésicules pourrait être caractérisée par un petit nombre de quantités mesurables, ce qui pourrait avoir un grand intérêt pour la compréhension de la rhéologie du sang. Un grand nombre d'études expérimentales [63] ont pu être effectuées sur ce sujet, mais un cadre explicatif global manque encore peut-être, et les simulations numériques pourraient se révéler pertinentes à ce niveau...

Annexe A

Notations utilisées dans ce document

Nous regroupons dans cette annexe les principales notations utilisées dans ce document, leurs unités et leurs définitions si cela est nécessaire. Les symboles dont l'utilisation est limitée ne sont pas reproduits ici, et leur définition peut être obtenue dans le texte. Si cela est nécessaire, la page indiquée correspond à la première utilisation du symbole dans le manuscrit.

A.1 Symboles grecs

Nom	Signification	Unité	Définition	Page
$\bar{\kappa}$	Module de courbure gaussienne	J		104
χ_e	Module de compressibilité	$J.m^{-2}$		102
η	Viscosité	$kg.m^{-1}.s^{-1}$		
η_{cis}	Viscosité de cisaillement	$kg.m^{-1}.s^{-1}$	$\sigma_{12}/\dot{\gamma}$	40
ϵ	Largeur du champ de phase	m		
$\epsilon_{\mathbf{f}_s}$	Constante de diffusion pour $\mathbf{f}_s$	$m^2.s^{-2}$		134
ϵ_v	Densité "numérique"	$kg.m^{-3}$		
ϵ_ζ	Constante de diffusion pour ζ	$m^2.s^{-2}$		112
Γ	Fréquence de relaxation du champ de phase	s^{-1}		
κ	Module de courbure (moyenne)	J		104

Nom	Signification	Unité	Définition	Page
λ	Rapport de viscosités		η_{int}/η_{est}	
λ_c	Rapport de viscosités critique			
ρ_c	Densité du cylindre ou de la vésicule	$kg.m^{-3}$		133
$\boldsymbol{\sigma}$	Tenseur des contraintes	$kg.m^{-1}.s^{-2}$		
σ	Coefficient de POISSON			132
Σ	Tension de surface	$N.m^{-1}$		
Σ_{lyse}	Tension de rupture	$J.m^{-2}$		106
τ_{2D}	Taux de dégonflement bidimensionnel		$4\pi S/L^2$	109
τ_{3D}	Taux de dégonflement tridimensionnel		$6\sqrt{\pi}V/A^{3/2}$	108
θ,ϕ	Champ de phase			
ζ	Multiplicateur de LAGRANGE	$J.m^{-2}$		108
$\dot{\gamma}$	Fréquence de solliciation	s^{-1}		

A.2 Symboles latins

Nom	Signification	Unité	Définition	Page
$c_{1,2}$	Courbures principales	m^{-1}	$1/R_{1.2}$	103
c_0	Courbure spontanée	m^{-1}		104
Ca	Nombre capillaire		$\eta\dot{\gamma}R/\Sigma$	
Ca_c	Nombre capillaire critique			78
Ca_G	Nombre de sédimentation		$\eta_{ext}\dot{\gamma}/\pi\rho_c gR$	134
Ca_K	Nombre élastique		$\eta_{ext}\dot{\gamma}L/KR$	134
Ca_T	Nombre de tension		$\eta_{ext}R\dot{\gamma}/T$	
Ca_κ	Nombre de courbure		$\eta_{ext}R^3\dot{\gamma}/\kappa$	
$\mathbf{D}$	Tenseur taux de déformations	s^{-1}	$\left(\nabla\mathbf{v}+\nabla\mathbf{v}^T\right)/2$	
D_c	Déformation critique			78
E	Module d'YOUNG	$J.m^{-3}$		132
E_{courb}	Energie libre d'HELFRICH	J		104

Nom	Signification	Unité	Définition	Page
$\mathbf{f}_{mem}^{2D}$	Force de membrane bidimensionnelle	N	$\delta E_{mem}^{2D}/\delta\mathbf{r}(s)$	111
$\mathbf{f}_s$	Force de rappel due au substrat	N		134
G	Courbure gaussienne	m^{-2}	$Det(\mathcal{Q})$	103
H	Courbure moyenne	m^{-1}	$Tr(\mathcal{Q})/2$	103
K	Module de rigidité effectif du substrat	$J.m^{-3}$	$E(1-\sigma)/\left((1-2\sigma)(1+\sigma)\right)$	134
$N_{1,2}$	Première (deuxième) différence de contraintes normales	$kg.m^{-1}.s^{-2}$	$(\sigma_{11,22}-\sigma_{22,33})/\dot{\gamma}^2$	40
Q	Débit entre le cylindre et le substrat (par unité de longueur)	$m^2.s^{-1}$		137
Re	Nombre de REYNOLDS		$\epsilon_v R^2\dot{\gamma}/\eta_{out}$	
V_m	Vitesse moyenne du cylindre	$m.s^{-1}$	$(V_r+V_t)/2$	138
$V_{r,t}$	Vitesse de rotation (translation) du cylindre	$m.s^{-1}$		135
T	Constante de rappel (pour ζ)	$J.m^{-2}$		111
$\overset{\nabla}{\cdots}$	Dérivée convective supérieure		$\partial_t\cdots+\mathbf{v}.\nabla\cdots-\nabla\mathbf{v}^T.\cdots-\cdots.\nabla\mathbf{v}$	46
$\overset{\triangle}{\cdots}$	Dérivée convective inférieure		$\partial_t\cdots+\mathbf{v}.\nabla\cdots+\nabla\mathbf{v}.\cdots+\cdots.\nabla\mathbf{v}^T$	51
$\overset{\diamond}{\cdots}$	Dérivée corotationelle (de JAUMANN)		$\partial_t\cdots+\mathbf{v}.\nabla\cdots+(\boldsymbol{\omega}.\cdots)+(\boldsymbol{\omega}.\cdots)^T$	52

Annexe B

La limite “interface raide”

Cette annexe nous permet de regrouper les calculs nécessaires à la validation du modèle de champ de phase, dans le cas très simple d'un état stationnaire. Nous nous intéressons principalement aux gouttes newtoniennes ainsi qu'aux vésicules.

Dans un premier temps, nous donnons quelques résultats utiles de géométrie différentielle, puis nous présentons les calculs pour les gouttes, et enfin pour les vésicules.

B.1 Géométrie différentielle

Notre objectif ici est de regrouper certaines notions importantes de géométrie différentielle, notamment concernant les expressions analytiques des opérateurs différentiels usuels en coordonnées curviligne. Une présentation exhaustive pourra être trouvée dans la référence [106]. En effet, le système de coordonnées qui se prête le mieux à l'étude analytique du champ de phase est curviligne : la ligne de coordonnée $r = 0$ est associée à l'isocontour $\theta = 0$. On peut alors construire un système orthogonal à partir de cette ligne, dans lequel nous allons pouvoir effectuer nos calculs.

Les facteurs de dilatation

Les facteurs de dilatation permettent de relier les coordonnées cartésiennes d'un point à ses coordonnées dans tout autre système de coordonnée. Considérons un point de coordonnées (X,Y) sur la ligne $r = 0$ (voir figure B.1). Tout déplacement de ce point peut être considéré comme la somme de deux contributions indépendantes. La première est une variation le long de la courbe $(X,Y) \rightarrow (X + dX,Y + dY)$ avec $dX = ds\cos(\alpha)$ et $dY = ds\sin(\alpha)$. Dans ces expressions, α représente l'angle entre la tangente à la courbe et l'axe des x.

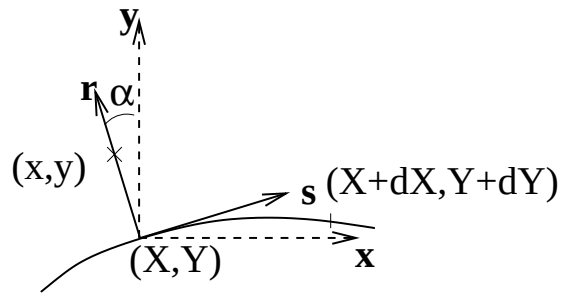


FIG. B.1 – *Système de coordonnées cartésien et curviligne.*

La seconde se fait à s constant, perpendiculairement à la ligne $r = 0$. On aura donc $(X,Y) \rightarrow (x,y)$ avec $x = X - r\sin(\alpha)$ et $y = Y + r\cos(\alpha)$. Le premier facteur d'échelle sera alors donné par :

$$h_r = \left(\left(\frac{\partial x}{\partial r} \right)^2 + \left(\frac{\partial y}{\partial r} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}} = 1. \tag{B.1}$$

un tel résultat était prévisible puisque la métrique n'est pas affectée par un déplacement radial (il n'y a pas de dilatation des lignes de coordonnées dans cette direction). Le second facteur d'échelle quant à lui sera donné par :

$$h_s = \left(\left(\frac{\partial x}{\partial s} \right)^2 + \left(\frac{\partial y}{\partial s} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}} = |1 - c_0 r| \tag{B.2}$$

avec c_0 la courbure locale de la ligne $r = 0$, définie par $\partial_s \alpha$. Si le produit $c_0 r$ est inférieur à 1 (c'est-à-dire si nous nous plaçons suffisamment près de la ligne de base, ou si la courbure est faible), alors on aura plus simplement $h_s = 1 - c_0 r$. Dans le cas contraire, on pourrait toujours trouver un point tel que h_s soit nul, ce qui rendrait le système de coordonnées ambigu.

Les opérateurs différentiels

Les opérateurs différentiels s'écrivent alors :

$$\begin{cases} \nabla \equiv \mathbf{n}_0 \partial_r + \mathbf{t}_0 h_s^{-1} \partial_s \\ \nabla . \mathbf{A} = h_s^{-1} \left(\partial_r \left(h_s A_r \right) + \partial_s A_s \right) \\ \Delta \equiv \partial_{rr} - c_0 h_s^{-1} \partial_r + h_s^{-2} \partial_{ss} + r h_s^{-3} \partial_s c_0 \partial_s \end{cases} \tag{B.3}$$

avec $\mathbf{n}_0$ et $\mathbf{t}_0$ les vecteurs unitaires normaux et tangents à la ligne de base. Le laplacien vectoriel s'écrira quant à lui :

$$\begin{cases} \Delta\mathbf{v}|_r = \partial_{rr}v_r - c_0h_s^{-1}\partial_r v_r + h_s^{-2}\left(\partial_{ss}v_r + 2c_0h_s^{-1}\partial_s v_s - c_0^2h_s^{-2}v_r + \partial_s c_0 v_s\right) \\ \qquad +rh_s^{-3}\partial_s c_0\left(\partial_s v_r + c_0h_s^{-1}v_s\right) \\ \\ \Delta\mathbf{v}|_s = \partial_{rr}v_s - c_0h_s^{-1}\partial_r v_s + h_s^{-2}\left(\partial_{ss}v_s - 2c_0h_s^{-1}\partial_s v_r - c_0^2h_s^{-2}v_s - \partial_s c_0 v_s\right) \\ \qquad +rh_s^{-3}\partial_s c_0\left(\partial_s v_s - c_0h_s^{-1}v_r\right) \end{cases} \tag{B.4}$$

Les quantités géométriques

Le vecteur tangent $\mathbf{t}_0$ se déduit du vecteur normal $\mathbf{n}_0$ par $\mathbf{t}_0 = \mathbf{n}_0 \times \mathbf{z}$ avec $\mathbf{z}$ le vecteur normal au plan. En d'autres termes, nous aurons :

$$\partial_s\mathbf{t}_0 = c\mathbf{n}_0 \quad \text{et} \quad \partial_s\mathbf{n}_0 = -c\mathbf{t}_0 \tag{B.5}$$

avec c la courbure du point considéré. La courbure des lignes de coordonnées en tout point de l'espace se déduisent du vecteur normal $\mathbf{n}_0$ par :

$$c = -\nabla.\mathbf{n}_0. \tag{B.6}$$

En $r = 0$, la courbure se confond avec celle de l'isocontour $\theta = 0$. En dehors de cette ligne, nous ne pouvons rien dire, à moins que les isocontours du champ de phase ne soient parallèles entre eux. Nous allons discuter ce point dans le paragraphe suivant.

Ces résultats peuvent alors être utilisés pour les calculs de la limite $\epsilon \to 0$ du chapitre 1 consacré au champ de phase.

B.2 Le cas des gouttes

Pour illustrer le calcul, nous allons simplement supposer que les liquides internes et externes sont newtoniens. Dans la limite de STOKES, et en présence d'un contraste de viscosité, nous avons :

$$\begin{cases} \eta(\theta)\,\Delta\theta - \nabla P + \nabla\eta(\theta).\mathbf{D} + c\Sigma\nabla\theta \\ \\ \nabla.\mathbf{v} = 0 \\ \\ \partial_t\theta + \mathbf{v}.\nabla\theta = \Gamma^{-1}\left(\theta\left(1-\theta^2\right) + \epsilon^2\left(\Delta\theta + c\left|\nabla\theta\right|\right)\right) \end{cases} \tag{B.7}$$

Nous avons $\eta(\theta) = A + B\theta$ avec :

$$\begin{cases} A = \dfrac{\eta^{(1)} + \eta^{(2)}}{2} \\ \\ B = \dfrac{\eta^{(1)} - \eta^{(2)}}{2} \end{cases} \tag{B.8}$$

Cette partie, essentiellement technique, doit nous permettre de vérifier la cohérence du modèle que nous avons adopté. Les calculs sont naturellement effectués dans le système de coordonnées intrinsèque construit à partir de l'isocontour $\theta = 0$ du champ de phase.

Le tenseur "taux de déformation" s'écrit alors :

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} 2\partial_r v_r & (1-c_0)^{-1}\left(\partial_s v_r + c_0 v_s\right) + \partial_r v_s \\ (1-c_0)^{-1}\left(\partial_s v_r + c_0 v_s\right) + \partial_r v_s & 2(1-c_0)^{-1}\left(\partial_s v_s - c_0 v_r\right) \end{pmatrix} \tag{B.9}$$

Pour simplifier les calculs, nous allons supposer que les isocontours du champ de phase restent parallèles entre eux. Nous aurons l'occasion de revenir sur cette hypothèse par la suite. Nous avons alors facilement :

$$\nabla\theta.\mathbf{D} = \begin{pmatrix} 2\partial_r v_r \partial_r \theta \\ \\ \left((1-c_0 r)^{-1}\left(\partial_s v_r + c_0 v_s\right) + \partial_r v_s\right)\partial_r \theta \end{pmatrix} \tag{B.10}$$

Il est alors relativement facile d'écrire les composantes normales et tangentielles de l'équation de STOKES :

$$\begin{cases} \left(A + B\theta\right)\Delta\mathbf{v}|_r + 2B\partial_r v_r \partial_r \theta - \partial_r \theta + \dfrac{c_0\Sigma}{1-c_0 r}\partial_r \theta = 0 \\ \\ \left(A + B\theta\right)\Delta\mathbf{v}|_s + B\left[\dfrac{1}{1-c_0 r}\left(\partial_s v_r + \dfrac{c_0}{1-c_0 r}v_s + \partial_r v_s\right)\right]\partial_r \theta - \dfrac{1}{1-c_0 r}\partial_s P = 0 \end{cases} \tag{B.11}$$

Nous allons nous placer systématiquement dans un état stationnaire pour simplifier les calculs.

B.2.1 Motivations

Si nous considérons le système physique de départ, nous l'avons dit dans le texte, l'interface apparaît comme une zone singulière. La seule échelle de longueur caractéristique est la taille R de la goutte. Les conditions aux limites (continuité de la vitesse et des contraintes) nous permettent de mettre en évidence l'influence de l'interface.

L'introduction du champ de phase nous amène à introduire une deuxième échelle de longueur dans le problème, la largeur ϵ de la zone interfaciale. La discontinuité a donc été remplacée par une zone de variation rapide mais continue de θ, mais il convient de vérifier que dans la limite $\epsilon/R \to 0$, les conditions aux limites sont bien vérifiées. Si ce n'est pas le cas, des termes correctifs peuvent être ajoutés[1]. Plus précisément, les termes d'ordre 0 coïncident normalement avec les prescriptions liées à une interface raide, et les termes d'ordre supérieurs donneront les correcions.

Ceci nous incite à séparer l'étude en 2. Dans un premier temps, nous faisons tendre ϵ vers 0 en gardant la taille du système fixe. La contribution de la zone interfaciale est alors singulière, et la dynamique des liquides sera gouvernée par l'équation de STOKES pour un fluide libre aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur de la goutte. Ceci définit ce que nous désignerons désormais par **espace externe**. Il est naturellement indispensable de préciser les conditions aux limites au niveau de l'interface pour pouvoir fermer le problème.

Dans un second temps, ϵ garde une taille finie, mais la taille du système tend vers l'infini. La contribution de la zone interfaciale n'est alors plus singulière, et nous renormalisons la coordonnée radiale r (la distance à l'interface) par ϵ pour traiter efficacement les variations rapides des différents champs. Nous pouvons alors préciser les conditions aux limites au niveau de l'interface. Ceci définit l'**espace interne**.

Nous ferons alors 2 développements, le premier dans l'espace interne, le second dans l'espace externe. Il faudra naturellement préciser le lien entre ces 2 développements.

B.2.2 Limite dans l'espace externe

C'est ici que les calculs sont les plus simples, puisqu'intuitivement, le champ de phase y est homogène. Le développement en puissances de ϵ s'écrit :

$$\begin{cases} \theta = \theta_0 + \epsilon\theta_1 + \mathcal{O}(\epsilon^2) \\ \mathbf{v} = \mathbf{v}_0 + \epsilon\mathbf{v}_1 + \mathcal{O}(\epsilon^2) \\ P = \Pi_0 + \epsilon\Pi_1 + \mathcal{O}(\epsilon^2) \end{cases} \tag{B.12}$$

Il suffit alors de reporter ce développement dans les équations (B.11) et d'identifier terme à terme.

Ordre 0

L'équation de transport du champ de phase se réduit simplement à :

1. C'est le cas notamment du terme de FOLCH que nous avons introduit dans le texte.

$$\theta_0 (1 - \theta_0) = 0 \tag{B.13}$$

ce qui, compte-tenu des conditions aux limites, nous donne $\theta_0 = -1$ à l'intérieur de la goutte et $\theta_0 = +1$ à l'extérieur. Les termes en $\partial_r \theta$ seront donc nuls loins de la zone interfaciale, ce qui est tout-à-fait intuitif (l'influence de l'interface est nulle à l'infini), et la dynamique se réduit alors à celle d'un fluide libre :

$$\begin{cases} \eta^{(1)} \Delta \mathbf{v}_0 - \nabla \Pi_0 = 0 \\ \\ \eta^{(2)} \Delta \mathbf{v}_0 - \nabla \Pi_0 = 0 \end{cases} \tag{B.14}$$

Il faudra naturellement préciser les conditions aux limites, ce qui sera fait par une étude fine du comportement des variables dynamiques dans l'espace interne. Ceci est l'objet du prochain paragraphe.

Ordre 1

A ce niveau, il est facile de montrer que $\theta_1 = 0$ et que par conséquent, nous obtenons à nouveau une équation similaire à B.14 à l'ordre 1. Sans restriction de généralité nous décidons de rejeter toute la difficulté à l'ordre 0, et nous posons $\mathbf{v}_1 = 0$ et $\Pi_1 = 0$.

B.2.3 Limite dans l'espace interne

Les calculs sont ici plus complexes. Nous allons renormaliser la coordonnée radiale par la largeur de l'interface en introduisant une nouvelle coordonnée $\rho = r/\epsilon$. De la même façon que précédemment, nous écrirons :

$$\begin{cases} \bar{\theta} = \bar{\theta}_0 + \epsilon \bar{\theta}_1 + \mathcal{O}(\epsilon^2) \\ \\ \bar{\mathbf{v}} = \bar{\mathbf{v}}_0 + \epsilon \bar{\mathbf{v}}_1 + \mathcal{O}(\epsilon^2) \\ \\ \bar{P} = \bar{\Pi}_0 + \epsilon \bar{\Pi}_1 + \mathcal{O}(\epsilon^2) \end{cases} \tag{B.15}$$

Il est important de faire le lien entre les 2 développements. La difficulté principale vient du fait que quand ϵ tend vers 0, quelle que soit la valeur de ρ dans l'espace interne, la valeur correspondante de r dans l'espace externe tend vers 0. Formellement, nous avons donc une équivalence entre l'intervale $]-\infty, +\infty[$ et $]0^-, 0^+[$. Ce type de raccord peut être rencontré en théorie de la couche limite pour les écoulements turbulents, et constitue un domaine de recherche en soi.

Nous pouvons néanmoins écrire le tableau de correspondance suivant à l'ordre 0 :

$$\begin{cases} \lim\limits_{\rho\to\pm\infty} \bar{\theta_0}(\rho) = \pm 1 \\ \lim\limits_{\rho\to\pm\infty} \bar{\Pi_0}(\rho,s) = \Pi_0(0^{\pm},s) \\ \lim\limits_{\rho\to\pm\infty} \bar{\mathbf{v}_0}(\rho,s) = \mathbf{v}_0(0^{\pm},s) \\ \lim\limits_{\rho\to\pm\infty} \bar{\partial_\rho \mathbf{v}_0}(\rho,s) = \partial_r \mathbf{v}_0(0^{\pm},s) \end{cases} \tag{B.16}$$

De la même façon, nous avons $\lim\limits_{\rho\to\pm\infty} \bar{\theta_1}(\rho) = 0$. La difficulté suivante consiste à développer les expressions B.3 et B.4 en puissances de ϵ. Nous avons ainsi :

$$\begin{cases} \nabla \equiv \frac{1}{\epsilon}\mathbf{n}_0\partial_\rho + \mathbf{t}_0\partial_s + \mathcal{O}(\epsilon) \\ \nabla.\mathbf{A} = \frac{1}{\epsilon}\partial_\rho A_{r0} + \partial_\rho\left(A_{r1} - c_0\rho A_{r0}\right) - c_0\rho\partial_\rho A_{r0} + \partial_s A_{s0} + \mathcal{O}(\epsilon) \\ \Delta \equiv \frac{1}{\epsilon^2}\partial_{rr} - \frac{1}{\epsilon}c_0\partial_\rho + \mathcal{O}(1) \end{cases} \tag{B.17}$$

avec $A_r = A_{r0} + \epsilon A_{r1} + \mathcal{O}(\epsilon^2)$ et $A_s = A_{s0} + \epsilon A_{s1} + \mathcal{O}(\epsilon^2)$.

La forme précise des quantités dynamiques dans l'espace interne ne nous intéresse pas, nous voulons simplement vérifier la validité des conditions aux limites.

Le problème de la courbure du champ de phase

Nous l'avons vu dans le texte, il est possible de définir en tout point de l'espace un vecteur normal et une courbure pour les isocontours du champ de phase :

$$\mathbf{n} = \frac{\nabla\theta}{|\nabla\theta|} \quad \text{et} \quad c = -\nabla.\mathbf{n}. \tag{B.18}$$

Il serait intéressant de relier ces définitions à la normale et à la courbure des lignes de coordonnées, introduites dans la section précédente. En repartant du développement $\theta = \bar{\theta_0} + \epsilon\bar{\theta_1} + \mathcal{O}(\epsilon)$ et des expressions B.17 pour les opérateurs différentiels, il est facile de montrer que :

$$\mathbf{n} = \mathbf{n}_0 + \mathcal{O}(\epsilon) \tag{B.19}$$

et donc que :

$$c = c_0 + \mathcal{O}(\epsilon). \tag{B.20}$$

A l'ordre 0 donc, il est légitime dans l'espace interne d'assimiler la courbure du champ de phase à celle des lignes de coordonnée. En d'autres termes, les isocontours du champ de phase se confondent avec les lignes de coordonnées

au moins à l'ordre 0. Nous allons voir par la suite que cette identification reste valide même au premier ordre.

La limite pour les équations dynamiques

Nous allons reprendre les notations du texte. A l'ordre dominant (ϵ^{-2}), l'équation de Stokes devient :

$$\begin{cases} \left(A + B\bar{\theta}_0\right) \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{r0} + 2B\partial_\rho \bar{v}_{r0}\partial_\rho\bar{\theta}_0 = 0 \\ \\ \left(A + B\bar{\theta}_0\right) \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{s0} + B\partial_\rho \bar{v}_{s0}\partial_\rho\bar{\theta}_0 = 0 \end{cases} \tag{B.21}$$

et la condition d'incompressibilité (ϵ^{-1}) :

$$\partial_\rho \bar{v}_{n0} = 0. \tag{B.22}$$

La projection de l'équation de Stokes sur la normale locale nous donne alors $\partial_{\rho\rho}\bar{v}_{r0} = 0$, puisque $\bar{\theta}_0 = -A/B$ n'est pas compatible avec les conditions aux limites. L'intégration de la condition d'incompressibilité nous donne la continuité de la composante normale de la vitesse :

$$\bar{v}_{r0}(-\infty) = \bar{v}_{r0}(+\infty) \quad \Rightarrow \quad v_{r0}\left(0^-\right) = v_{r0}\left(0^+\right) \tag{B.23}$$

alors que l'intégration de la composante normale de l'équation de Stokes nous fournit la continuité de la dérivée radiale de la vitesse à la traversée de l'interface :

$$\frac{\partial \bar{v}_{r0}}{\partial \rho}(-\infty) = \frac{\partial \bar{v}_{r0}}{\partial \rho}(+\infty) \quad \Rightarrow \quad \frac{\partial v_{r0}}{\partial r}\left(0^-\right) = \frac{\partial v_{r0}}{\partial r}\left(0^+\right). \tag{B.24}$$

La projection de l'équation de Stokes sur la tangente nous donne quant à elle :

$$\begin{aligned} \left(S + D\bar{\theta}_0\right) \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{s0} + D\partial_\rho \bar{v}_{s0}\partial_\rho\bar{\theta}_0 &= 0 \\ S\int_{-\infty}^{+\infty} \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{s0}d\rho + D\left[\int_{-\infty}^{+\infty} \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{s0}d\rho + \int_{-\infty}^{+\infty} \partial_\rho \bar{v}_{s0}\partial_\rho\bar{\theta}_0 d\rho\right] &= 0 \\ S\left[\frac{\partial \bar{v}_{s0}}{\partial \rho}\right]_{-\infty}^{+\infty} + D\left[\bar{\theta}_0 \frac{\partial \bar{v}_{s0}}{\partial \rho}\right]_{-\infty}^{+\infty} &= 0 \end{aligned} \tag{B.25}$$

soit finalement :

$$\frac{\partial \bar{v}_{s0}}{\partial \rho}(-\infty) = \frac{\eta_{int}}{\eta_{ext}}\frac{\partial \bar{v}_{s0}}{\partial \rho}(+\infty) \quad \Rightarrow \quad \frac{\partial v_{s0}}{\partial r}\left(0^-\right) = \frac{\eta_{int}}{\eta_{ext}}\frac{\partial v_{s0}}{\partial r}\left(0^+\right). \tag{B.26}$$

La pente de la vitesse tangentielle subit donc une discontinuité à l'interface, si la viscosité des 2 liquides en présence n'est pas la même.

L'équation du champ de phase à l'ordre dominant (ordre 0) donne simplement :

$$\frac{\partial^2 \bar{\theta}_0}{\partial \rho^2} = \bar{\theta}_0 \left(1 - \bar{\theta}_0^2\right). \tag{B.27}$$

Cette équation s'intègre facilement en remarquant que les conditions aux limites sont indépendantes de l'absisce curviligne s ($\bar{\theta}_0(\pm\infty) = \pm 1$), et donc par unicité des solutions, $\bar{\theta}_0$ non plus; On obtient alors :

$$\bar{\theta}_0 = \tanh\left(\frac{\rho}{\sqrt{2}}\right). \tag{B.28}$$

Dans l'état stationnaire donc, le profil du champ de phase est bien conservé. Il est intéressant de pousser le calcul à l'ordre 1 pour le champ de phase, afin d'illustrer l'importance du terme correctif de Folch que nous avons utilisé dans notre modèle numérique. A cet ordre, nous aurons :

$$-\bar{\theta}_1 \left(1 - \bar{\theta}_0^2\right) + 2\bar{\theta}_0^2 \bar{\theta}_1 - c_0 \partial_\rho \bar{\theta}_0 + \partial_{\rho\rho} \bar{\theta}_1 + c_0 \partial_\rho \bar{\theta}_0 = 0. \tag{B.29}$$

Cette équation possède une solution évidente, $\bar{\theta}_1 = 0$. Sans le terme de Folch, cette solution serait beaucoup plus complexe. Outre les conséquences physiques de ce terme que nous avons commentées dans le texte, il faut remarquer que cette dernière relation, combinée à B.20, nous permet d'affirmer que les isocontours du champ de phase sont parallèles jusqu'à l'ordre 1 inclus, et donc qu'ils se confondent avec les lignes de coordonnées. Le montrer à tous les ordres serait beaucoup plus complexe, en particulier dans les situations instationnaires, mais il nous a semblé raisonnable de supposer la validité de cette hypothèse à chaque fois que nous en avons eu besoin, en particulier dans la dérivation de la force de membrane associée aux vésicules (voir annexe correspondante).

La projection de l'équation de Stokes sur la normale à l'ordre supérieur (ϵ^{-1}) nous fournit la relation suivante, compte-tenu des expressions déjà obtenues aux ordres inférieurs :

$$\partial_\rho \bar{\Pi}_0 = c_0 \Sigma \partial_\rho \bar{\theta}_0 \tag{B.30}$$

qui s'intègre aisément pour donner :

$$\Pi_0\left(0^+\right) - \Pi_0\left(0^-\right) = 2c_0\Sigma. \tag{B.31}$$

On retrouve bien la loi de Laplace. Pour terminer ce calcul, il nous faut encore exploiter la projection de l'équation de Stokes sur la tangente :

$$\left(S + D\bar{\theta}_0\right) \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{s1} + D\partial_\rho\bar{\theta}_0\partial_\rho\bar{v}_{s1} = c_0 \left(S + D\bar{\theta}_0\right) \partial_{\rho\rho}\bar{v}_{s0} - c_0 D\bar{v}_{s0}\partial_\rho\bar{\theta}_0 \quad \text{(B.32)}$$

La solution générale de cette équation est complexe. On peut simplement égaler les deux membres séparément à une même constante. Après différentiation par rapport à ρ du membre de droite (qui ne contient que les composantes d'ordre 0 de la vitesse tangentielle), on obtient :

$$c_0 S \left[\frac{\partial\bar{v}_{s0}}{\partial\rho}\right]_{-\infty}^{+\infty} + c_0 \left[\bar{\theta}_0 \frac{\partial\bar{v}_{s0}}{\partial\rho}\right]_{-\infty}^{+\infty} - c_0 D \left[\frac{\partial\bar{\theta}_0}{\partial\rho}\bar{v}_{s0}\right]_{-\infty}^{+\infty} = 0. \quad \text{(B.33)}$$

Une solution évidente est alors $\bar{v}_{s0} = f(s)$ avec $f(s)$ une fonction quelconque. Dans ce cas en effet, l'équation précédente se réduit à :

$$\left[\frac{\partial\bar{\theta}_0}{\partial\rho}\right]_{-\infty}^{+\infty} = 0 \quad \text{(B.34)}$$

qui est automatiquement vérifiée puisque $\bar{\theta}_0$ est une fonction impaire. Nous avons donc finalement bien la continuité de la vitesse tangentielle le long de l'interface :

$$v_{s0}\left(0^-,s\right) = v_{s0}\left(0^+,s\right). \quad \text{(B.35)}$$

Nous avons exprimé la condition d'incompressibilité à l'ordre suivant et nous avons obtenu :

$$\partial_\rho\bar{v}_{r1} - c_0\bar{v}_{r0} + \partial_s\bar{v}_{s0} = 0 \quad \text{(B.36)}$$

qui ne nous permet pas d'aller plus loin. La vitesse tangentielle est donc bien libre de varier le long de l'interface, puisque rien ne garantit la conservation locale de la longueur de l'interface dans le cas des gouttes. Nous allons voir dans le prochain paragraphe que notre modélisation des vésicules garantit bien la conservation de cette quantité.

B.3 Le cas des vésicules

Le calcul de cette limite dans le cas des vésicules est en tout point identique à celui que nous venons d'effectuer pour les gouttes, nous ne le reprendrons donc pas dans son intégralité ici. La différence majeure concerne la loi de Laplace, qui doit être remplacée par une relation plus complexe tenant compte de la force de courbure. Avec les notations que nous avons introduites dans le premier paragraphe, on peut montrer que :

$$\frac{\bar{\Pi}_0}{\partial \rho} = \mathbf{f}_{mem}.\mathbf{n}_0 \tag{B.37}$$

qui traduit le saut de contrainte normale à la traversée de l'interface. D'autre part, l'étude dans l'espace interne de l'équation d'advection du multiplicateur de Lagrange ζ (1.28) nous fournit à l'ordre dominant un résultat intéressant. On peut en effet développer ce paramètre de la façon suivante:

$$\bar{\zeta}(\rho,s) = \bar{\zeta}_0(\rho,s) + \epsilon\bar{\zeta}_1(\rho,s) + \mathcal{O}(\epsilon^2). \tag{B.38}$$

En reportant ce développement dans l'équation 1.28 on obtient facilement, dans l'état stationnaire et à l'ordre dominant :

$$T\frac{\partial \mathbf{V}_0}{\partial s}\mathbf{t}_0 = 0. \tag{B.39}$$

En tenant compte de $\partial_s \mathbf{n}_0 = -c_0\mathbf{t}_0$, on obtient alors :

$$\frac{\partial V_{s0}}{\partial s} = c_0 V_{r0} \tag{B.40}$$

qui est bien l'expression de la contrainte que nous voulons voir vérifiée. On peut également montrer que la composante tangentielle de la force $\mathbf{f}_{mem}$ est nulle dans l'état stationnaire, et on retrouve donc bien la continuité des contraintes tangentielles à la traversée de l'interface.

En toute rigueur, il faudrait effectuer ce type de calcul dans l'état non-stationnaire, puisque ce sera le cas de plusieurs des situations dynamiques que nous allons rencontrer maintenant.

Annexe C

Algorithme de résolution

Nous donnons ici les formules utilisées pour la discrétisation isotrope des opérateurs différentiels dans l'espace réel, ainsi qu'une étude de l'influence de la méthode de calcul du gradient de θ dans le terme d'advection de l'équation dynamique du champ de phase sur le volume et l'élongation de gouttes newtoniennes. Enfin, les valeurs numériques des paramètres sont données à la fin de cette annexe.

C.1 Opérateurs différentiels

Nous travaillons dans des domaines bidimensionnels (y compris dans le cas des gouttes de la deuxième partie, qui sont axisymétriques) rectangulaires. La discrétisation est donc très simple, il s'agit d'un maillage structuré, régulier, à mailles carrés (les deux directions de l'espace sont discrétisées avec la même précision). Le pas du réseau est noté ici h.

Il est nécessaire dans certains cas d'utiliser une discrétisation des opérateurs différentiels dans l'espace réel (différences finies), notamment pour le calcul de la courbure. En effet, les transformées de FOURIER peuvent introduire des oscillations aux petites échelles qui peuvent complétement déstabiliser numériquement le système. Nous avons utilisé une discrétisation qui garantit l'isotropie à l'ordre 2 en espace. Les dérivées d'ordre 1 et 2 d'une fonction $f(x,y)$ sont alors données par :

$$\left\{\begin{array}{l} \dfrac{\partial f}{\partial x} = \dfrac{1}{12h}\,(4f(x+h,y) - f(x-h,y) + f(x+h,y+h) - f(x-h,x+h) + \\ \qquad\qquad f(x+h,y-h) - f(x-h,y-h)) \\ \\ \dfrac{\partial f}{\partial y} = \dfrac{1}{12h}\,(4f(x,y+h) - f(x,y-h) + f(x+h,y+h) - f(x+h,x-h) + \\ \qquad\qquad f(x-h,y+h) - f(x-h,y-h)) \\ \\ \dfrac{\partial^2 f}{\partial x^2} + \dfrac{\partial^2 f}{\partial y^2} = \dfrac{1}{6h^2}\,(4(f(x+h,y) + f(x-h,y) + f(x,y+h) + f(x,y-h)) + \\ \qquad\qquad\qquad f(x+h,y+h) + f(x-h,y+h) + f(x-h,y-h) + \\ \qquad\qquad\qquad f(x+h,y-h) - 20f(x,y)) \end{array}\right. \tag{C.1}$$

En géométrie axisymétrique, les opérateurs différentiels diffèrent de leurs homologues bidimensionnels par la présence de termes singuliers en $r = 0$. Par exemple, le Laplacien axisymétrique s'écrit :

$$\Delta f = \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial z^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial f}{\partial r}. \tag{C.2}$$

L'évaluation de ces opérateurs sur l'axe de symétrie pose donc problème, et nous utilisons une extrapolation polynomiale d'ordre 3 pour le résoudre : les termes singuliers sont alors évalués séparément. Explicitement, le shéma d'interpolation s'écrit :

$$f(0,z) = \frac{1}{11}(18f(h,z) - 9f(2h,z) + 2f(3h,z)). \tag{C.3}$$

Ainsi, les systèmes axisymétriques peuvent être considérés comme purement bidimensionnels, avec des termes correctifs singuliers calculés séparément.

C.2 Influence du maillage sur les résultats

Dans ce paragraphe, nous allons présenter quelques résultats pour la déformation de gouttes newtoniennes, bidimensionnelles ou axisymétriques, en nous focalisant sur la discrétisation et sur le calcul du terme d'advection.

C.2.1 Géométrie bidimensionnelle

En géométrie bidimensionnelle, nous pouvons utiliser l'algorithme de projection (présenté dans le texte et détaillé dans cette annexe) pour garantir l'incompressibilité du fluide. Nous présentons tout d'abord l'évolution temporelle d'une goutte soumise à un écoulement d'élongation, sans contraste de

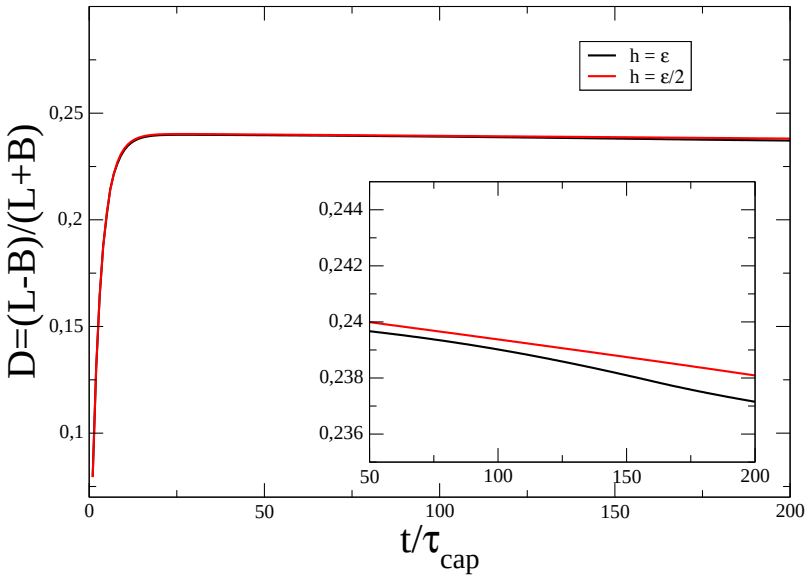


FIG. C.1 – *Déformation (paramètre de* TAYLOR*) d'une goutte bidimensionnelle en élongation : influence du maillage (advection calculée dans l'espace réel).*

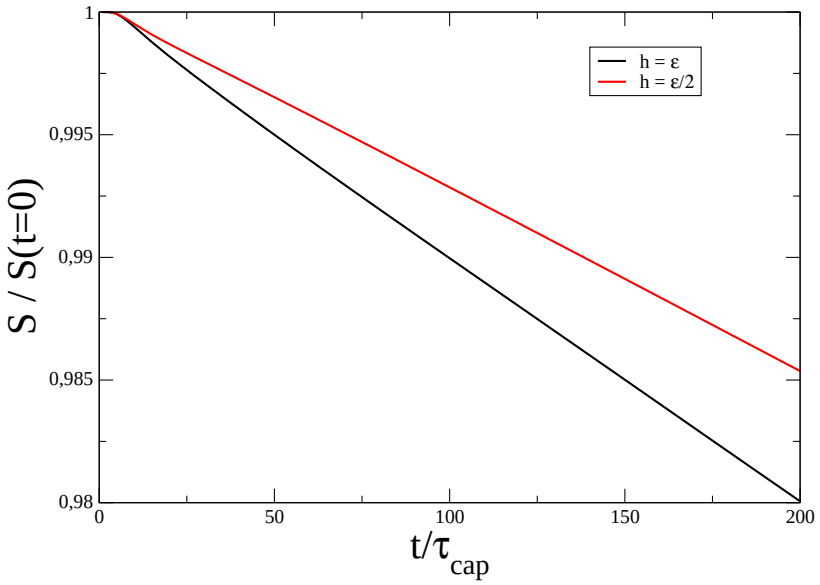


FIG. C.2 – *Surface normalisée d'une goutte bidimensionnelle en élongation : influence du maillage (advection calculée dans l'espace réel).*

viscosités. Le nombre capillaire vaut 0,10, ce qui permet d'obtenir un état stationnaire [19]. Deux approches sont présentées ici : tout d'abord, nous calculons le terme d'advection dans l'espace réel, puis dans l'espace de FOURIER.

Calcul du terme d'advection dans l'espace réel

Sur la figure C.1, nous voyons l'évolution temporelle du paramètre de TAYLOR au cours du temps. Rappelons que ce paramètre est défini de la façon suivante :

$$D = \frac{L - B}{L + B} \tag{C.4}$$

avec L et B respectivement la longueur et la largeur de la goutte. Ce paramètre vaut 0 pour une goutte circulaire.

Les deux courbes correspondent à deux maillages différents : le premier (courbe noire) est celui que nous avons utilisé dans nos calculs, le second (en rouge) est deux fois plus fin. Manifestement, la déformation n'est pas sensiblement affectée par le rafinement du maillage.

Par contre, nous voyons sur la figure C.2 que dans les deux cas, nous avons des pertes de surface, qui restent toutefois inférieures à deux pourcents. Nous poussons ici le calcul jusqu'à 200 fois le temps capillaire, ce qui est la valeur maximale que nous ayons utilisée dans nos calculs. Dans la mesure où la dynamique est conservative, et compte-tenu de la précision obtenue dans le calcul des termes dérivés de la fonctionnelle de GINZBURG-LANDAU (grâce aux transformées de FOURIER), nous pouvons raisonnablement incriminer le terme d'advection. En effet, plus le maillage est fin, meilleure sera son estimation, ce qui limite les pertes à ce niveau.

Calcul du terme d'advection dans l'espace de FOURIER

Cette affirmation est validée par le calcul du terme d'advection dans l'espace de FOURIER, qui est plus précis *a priori*. Nous utilisons ici les mêmes paramêtres physiques que précédemment. Cette fois encore, nous utilisons deux maillages différents. Nous voyons sur la figure C.3 que la défomation n'est ni affectée par le maillage, ni par le choix du calcul du terme en $\mathbf{v}.\nabla\theta$. L'évolution temporelle de la surface est représentée sur la figure C.4. Les pertes en surface sont un peu plus faibles (1,3 % contre 2 % dans l'espace réel), et sont moins sensibles à la résolution spatiale que précédemment. On peut cependant remarquer que $h = \epsilon$ conduit à des dérives moins fortes que $h = \epsilon/2$, cet effet étant présent également à trois dimensions, comme nous allons le voir bientôt.

En conclusion de cette analyse, il ressort d'une part que la principal source pour les pertes en surface est le terme d'advection, et qu'il est préférable d'utiliser l'espace de FOURIER pour évaluer ce terme. Cependant, le paramètre de

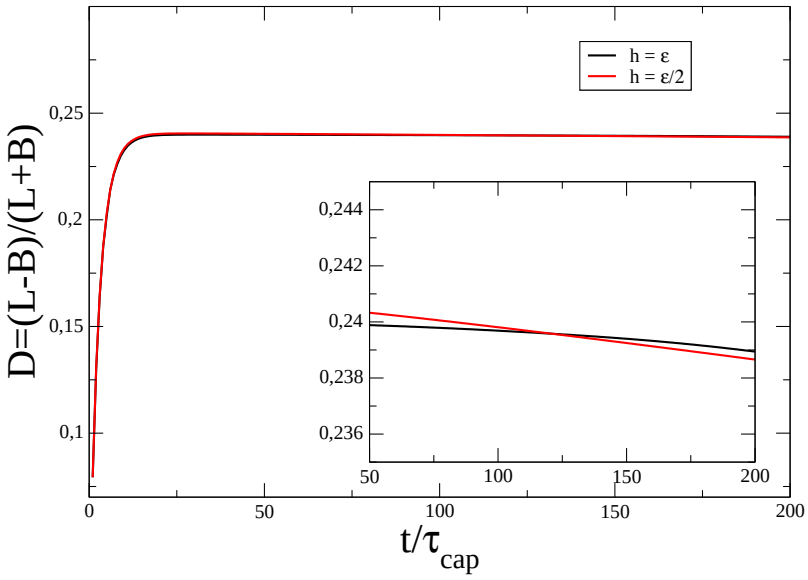


FIG. C.3 – *Déformation (paramètre de* TAYLOR*) d'une goutte bidimensionnelle en élongation : influence du maillage (advection calculée dans l'espace de* FOURIER*).*

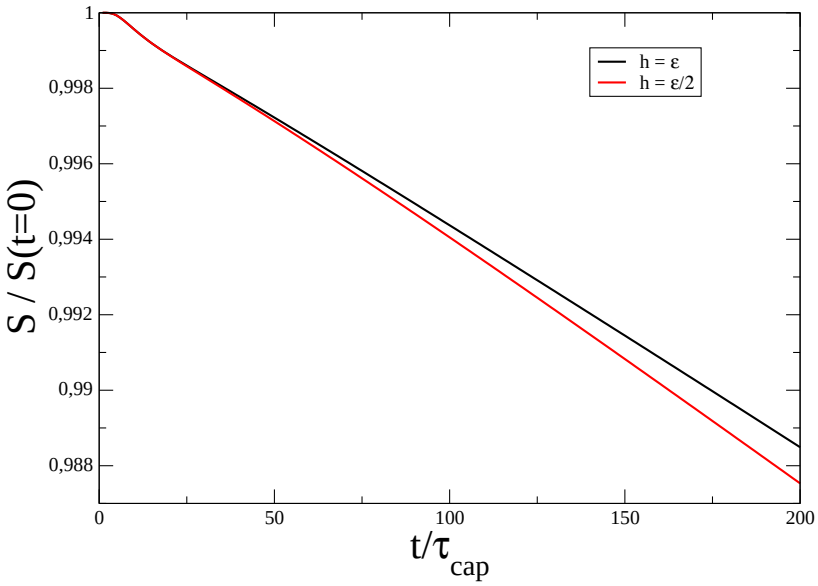


FIG. C.4 – *Surface normalisée d'une goutte bidimensionnelle en élongation : influence du maillage (advection calculée dans l'espace de* FOURIER*).*

déformation n'est pas affecté par le choix de la méthode de calcul.

C.2.2 Géométrie tridimensionnelle axisymétrique

En géométrie tridimensionnelle, outre l'imprécision de calcul sur le terme advectif, deux sources d'erreurs supplémentaires peuvent intervenir. La première concerne encore une fois l'évaluation des opérateurs différentiels, en particulier les laplaciens qui interviennent dans l'équation d'advection du champ de phase. En effet, nous avons vu dans le premier paragraphe que la géométrie axisymétrique se ramène au cas bidimensionnel, mais avec des termes singuliers sur l'axe qui demandent un traitement spécifique. A ce niveau, la précision du calcul est moins bonne. La deuxième source d'erreur spécifique concerne la contrainte d'incompressibilité, qui impose ici le calcul d'un champ de pression par une méthode de relaxation (décrite à la fin de cette annexe). Sans entrer ici dans les détails, précisons que la pression est calculée de manière itérative jusqu'à ce que la valeur moyenne de la divergence des vitesses soit inférieure à un seuil donné. Nous montrons ici l'influence de la valeur de ce seuil sur la dynamique.

Nous utilisons toujours une goutte en élongation, sans contraste de viscosités. Le capillaire est toujours égal à 0,1, ce qui est en dessous du seuil de rupture (voir par exemple [19] ou la première partie de ce document).

Influence du maillage : calcul dans l'espace de FOURIER

Deux choses sont à remarquer sur les courbes C.5 et C.6. La première est que comme dans le cas bidimensionnel, la résolution spatiale ne joue pas un rôle mesurable sur la valeur du paramètre de TAYLOR. La seconde concerne le volume de la goutte, qui présente le même type de dérives que dans le cas précédent (avec des pertes inférieures à 1,5 %). Néanmoins, il semble qu'un maillage trop fin (courbe rouge, figure C.6) déstabilise le système et provoque l'apparition d'irrégularités dans la dynamique (dues probablement aux instabilités aux petites longueurs d'onde). Les calculs que nous présentons dans ce document sont réalisés avec le maillage le plus "grossier".

Influence du calcul du champ de pression

Le second paramètre important ici est le seuil utilisé dans la routine de calcul du champ de pression. Nous présentons ici deux résultats (déformation et volume), avec le maillage utilisé dans nos calculs. Les courbes noires des figures C.7 et C.8 correspondent à un seuil de 10^{-3} (ce qui signifie que la valeur relative moyenne de la divergence dans le domaine de résolution est inférieure à 0,001), et les courbes rouges à un seuil de 10^{-4}. Clairement, ce paramètre n'a pas une influence majeure sur la dynamique : nous nous plaçons

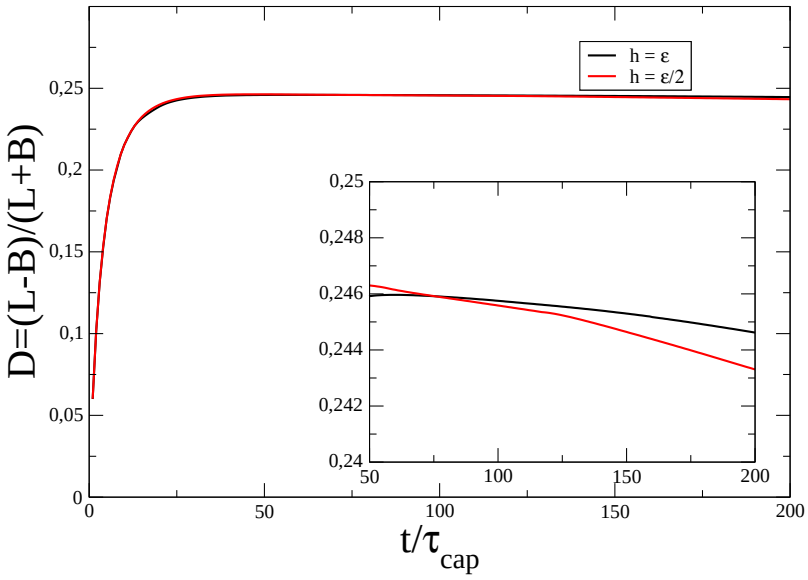


FIG. C.5 – *Déformation (paramètre de* TAYLOR*) d'une goutte tridimensionnelle en élongation : influence du maillage (advection calculée dans l'espace de* FOURIER*).*

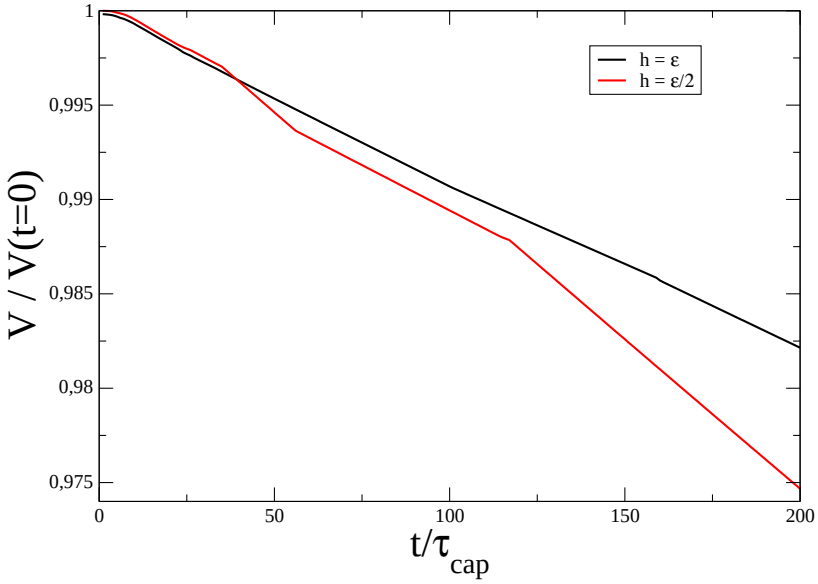


FIG. C.6 – *Volume normalisé d'une goutte tridimensionnelle en élongation : influence du maillage (advection calculée dans l'espace de* FOURIER*).*

à des valeurs trop faibles pour qu'il soit pertinent de diminuer encore le seuil.

C.3 Conditions aux limites : non glissement

Dans les chapitres consacrés aux vésicules en cisaillement confiné et aux liquides diphasiques, nous utilisons des conditions aux limites de non glissement sur les parois. La prise en compte rigoureuse de ces effets est difficile, et pénalisante en terme de temps de calcul. Nous avons plutôt utilisé une méthode de "ressorts raides", qui consiste à assimiler ces parois à des chaînes de ressorts tendus. Les gradients de vitesses vont provoquer l'apparition de forces de rappel qui vont limiter leurs développements. En pratique, nous avons donc deux équations supplémentaires à résoudre dans la dynamique (une équation vectorielle) :

$$\partial_t \mathbf{f}_r = -\mathbf{v}.\nabla \mathbf{f}_r - T_W \left(\mathbf{v} - \mathbf{u}\right) \tag{C.5}$$

avec $\mathbf{u}$ la vitesse de la paroi, imposée comme condition aux limites (dans notre cas, un cisaillement). Nous avons un premier terme qui traduit la force de rappel due aux ressorts, et pour stabiliser cette équation, nous avons ajouté un frottement visqueux, qui supprime les oscillations qui peuvent intervenir quand les contraintes appliquées sont trop fortes (dans une telle situation en effet, la tension des ressorts peut provoquer l'apparition de forces très importantes).

Ce champ de force est calculé dans tout l'espace, mais ne s'applique que sur la première ligne de sites de discrétisation au niveau de l'équation de Stokes.

C.4 Equation de Stokes et incompressibilité

L'équation de Stokes est résolue grâce à une méthode de relaxation :

$$Re\partial_t \mathbf{v} = \nabla.\left(\lambda_s(1-\theta)\mathbf{D} + (1+\theta)\mathbf{D} + \boldsymbol{\sigma}_p\right) - \nabla P + \mathbf{f} \tag{C.6}$$

avec $\mathbf{f}$ une force définie dans tout l'espace (en l'occurrence, due à la présence d'interfaces dans le liquide)[1]. Nous avons supprimé le terme non-linéaire en $\mathbf{v}.\nabla\mathbf{v}$ car le nombre de Reynolds est suffisamment faible pour négliger les effets inertiels.

Les notations sont les mêmes que dans le chapitre 2 de la partie consacrée aux gouttes. Le cas des vésicules newtoniennes est simplement obtenu en posant $\sigma_p = \mathbf{0}$. Nous pouvons regrouper les éventuelles contributions du contraste de viscosités et des contraintes viscoélastiques dans un terme source $\mathbf{F}$:

1. En pratique, cette force est localisée au niveau de l'interface par une distribution de Dirac régularisée. Nous appliquons un masque à cette régularisation, centré sur l'interface et de largeur quelques ϵ. Ceci permet de garantir la nullité effective de la force à longue distance

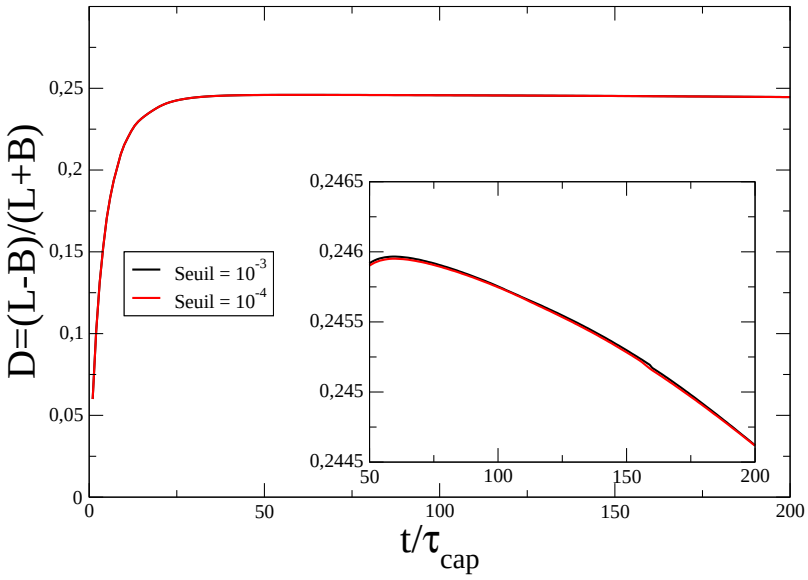


FIG. C.7 – *Déformation (paramètre de* TAYLOR*) d'une goutte tridimensionnelle en élongation : influence du seuil utilisé dans la routine de calcul du champ de pression (advection calculée dans l'espace de* FOURIER*).*

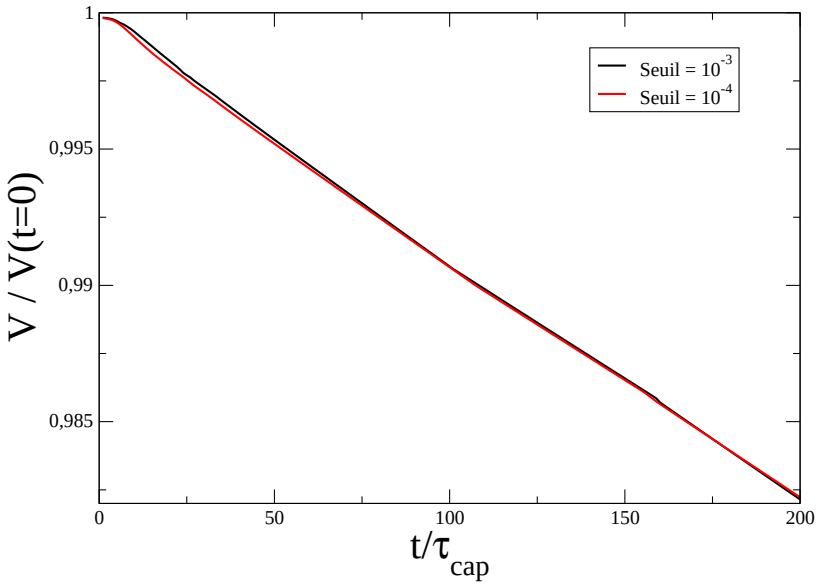


FIG. C.8 – *Volume normalisé d'une goutte tridimensionnelle en élongation : influence du seuil utilisé dans la routine de calcul du champ de pression (advection calculée dans l'espace de* FOURIER*).*

$$\mathbf{F} = \mathbf{f} + \mathbf{D}.\nabla\left(\lambda_s(1-\theta) + (1+\theta)\right) + \nabla.\boldsymbol{\sigma}_p. \tag{C.7}$$

L'équation de STOKES devient alors :

$$Re\partial_t\mathbf{v} = \lambda_s(\theta)\Delta\mathbf{v} - \nabla P + \mathbf{F} \tag{C.8}$$

avec $\lambda_s(\theta) = \lambda_s(1-\theta) + (1+\theta)$. Le Laplacien est une source d'instabilités numériques quand le pas de temps est trop important. Plutôt que de réduire le pas de temps, nous utilisons un schéma semi-implicite qui stabilise le système. Pour cela, il nous suffit de soustraire $\lambda_s^{max}\Delta\mathbf{v}$ aux deux membres de l'équation de STOKES, avec λ_s^{max} la plus grande viscosité dans l'écoulement. Nous obtenons ainsi :

$$Re\partial_t\mathbf{v} - \lambda_s^{max}\Delta\mathbf{v} = \left(\lambda_s(\theta) - \lambda_s^{max}\right)\Delta\mathbf{v} - \nabla P + \mathbf{F} \tag{C.9}$$

Le terme diffusif du membre de gauche est alors évalué à $t+dt$, et le champ de vitesse à $t+dt$ est obtenu grâce à une simple inversion dans l'espace de FOURIER. Simultanément, la projection sur l'espace normal à $\mathbf{k}$ est effectuée pour tenir compte de la contrainte d'incompressibilité. Le projecteur est défini par $\mathbf{I} - \mathbf{k}\otimes\mathbf{k}/\mathbf{k}^2$, et nous avons donc :

$$\mathbf{v}_k^{(t+dt)} = \left(\mathbf{I} - \frac{\mathbf{k}\otimes\mathbf{k}}{\mathbf{k}^2}\right)\left(\frac{1}{1+\lambda_s^{max}\frac{dt}{Re}k^2}\left[\mathbf{v}_k^{(t)} + \frac{dt}{Re}\left\{\left(\lambda_s(\theta) - \lambda_s^{max}\right)\Delta\mathbf{v} + \mathbf{F}\right\}_k^{(t)}\right]\right). \tag{C.10}$$

Le champ de pression ne doit donc pas être calculé explicitement.

En géométrie axisymétrique, la situation est un peu plus complexe puisque l'écriture de la divergence nulle ne se réduit pas à la somme de deux dérivées suivant les deux directions de l'espace. En effet nous avons :

$$\nabla.\mathbf{A} = \frac{\partial A_r}{\partial r} + \frac{\partial A_z}{\partial z} + \frac{A_r}{r}. \tag{C.11}$$

L'équation de STOKES est toujours résolue dans l'espace de FOURIER pour pouvoir bénéficier du traitement semi-implicite du Laplacien. Mais cette fois, aucune projection n'est effectuée. Nous déterminons plutôt un champ de vitesse auxilliaire $\tilde{\mathbf{v}}_k^{(t+dt)}$:

$$\tilde{\mathbf{v}}_k^{(t+dt)} = \frac{1}{1+\lambda_s^{max}\frac{dt}{Re}k^2}\left[\mathbf{v}_k^{(t)} + \frac{dt}{Re}\left\{\left(\lambda_s(\theta) - \lambda_s^{max}\right)\Delta\mathbf{v} + \mathbf{F}\right\}_k^{(t)}\right]. \tag{C.12}$$

Une procédure récursive est alors itérée pour ajuster le champ de pression, jusqu'à ce que la valeur moyenne de la divergence de la vitesse soit inférieure à 10^{-3} dans l'espace de FOURIER. Cette suite est définie de la façon suivante :

$$\begin{cases} P_k = P_k - dt_P \{\nabla.\mathbf{v}\}_k \\ \\ \mathbf{v}_k^{(t+dt)} = \tilde{\mathbf{v}}_k^{(t+dt)} + \dfrac{1}{1+\lambda_s^{max}\frac{dt}{Re}k^2} \{\nabla P\}_k \end{cases} \tag{C.13}$$

Le champ de pression finalement obtenu au temps t est alors utilisé comme point de départ à l'itération suivante, et rapidement la convergence est obtenue en une ou deux itérations.

C.5 Valeur des paramètres

Pour finir cette annexe, nous donnons les valeurs explicites des paramètres que nous avons utilisés dans nos simulations.

C.5.1 Vésicules

Nous sommes ici dans une géométrie purement bidimensionnelle. Les grilles utilisées contiennent 400*400 nœuds. En variables dimensionnées, nous avons utilisé les valeurs suivantes :

Paramètre	Valeur
ϵ	0.007
h	0.006
Γ	0.02
dt	0.001

C.5.2 Gouttes

Cette fois, nous utilisons systématiquement ici une géométrie axi-symétrique, avec des grilles de 300*250 nœuds en situations stationnaires, mais qui peuvent contenir jusqu'à 200*1600 pour la relaxation des gouttes les plus allongées. Les valeurs des paramètres sont ici données en tant que variables adimensionnées (voir texte) :

Paramètre	Valeur
ϵ	0.03
h	0.03
Γ	1
dt	0.01

C.5.3 Diphasiques

Les grilles contiennent typiquement 400*400 nœuds. Cette fois encore, nous donnons les paramètres en tant que variables adimensionnées.

Paramètre	Valeur
ϵ	0.01
h	0.01
Γ	1000
dt	0.001
$K_{repulsion}$	10

Le paramètre $K_{repulsion}$ intervient dans la force de répulsion au niveau des parois qui a la forme suivante :

$$\mathbf{f}_{repulsion} = K_{repulsion} \left[\tanh\left(\frac{y-(L-8\epsilon)}{\epsilon} \right)^2 - \tanh\left(\frac{y-8\epsilon}{\epsilon} \right)^2 \right] \mathbf{u}_y \delta_{\partial S}(\mathbf{r}) \tag{C.14}$$

Annexe D

Dérivation de la force de membrane en terme de champ de phase

Dans cette annexe, nous dérivons la force de membrane associée aux vésicules, en terme de champ de phase.

D.1 La force de courbure

En terme de champ de phase, nous avons vu que l'énergie libre associée à la courbure s'écrit (voir page 112) :

$$E^{2D}_{courb}[\theta] = \frac{\kappa}{4} \iint c[\theta]^2 \, |\nabla\theta| \, d\mathbf{r}. \tag{D.1}$$

La force de courbure est donc donnée par la dérivée fonctionnelle de $E^{2D}_{courb}[\theta]$:

$$\mathbf{f}^{2D}_{courb}[\theta] = -\frac{\delta E^{2D}_{courb}}{\delta\theta}\frac{\delta\theta}{\delta\mathbf{r}} = \frac{\delta E^{2D}_{courb}}{\delta\theta} \, |\nabla\theta| \, \mathbf{n}. \tag{D.2}$$

Le calcul de $E^{2D}_{courb}[\theta + \delta\theta]$ nécessite un peu de soin :

$$\begin{aligned} E^{2D}_{courb}[\theta + \delta\theta] &= \frac{\kappa}{4} \iint c[\theta + \delta\theta]^2 \, |\nabla\theta + \nabla\delta\theta| \, d\mathbf{r} \qquad \text{(D.3)} \\ &= \frac{\kappa}{4} \iint \left(c[\theta]^2 \, |\nabla\theta| + 2c[\theta]\delta c[\theta] \, |\nabla\theta| + c[\theta]^2 \mathbf{n} \, |\nabla\delta\theta| \right) d\mathbf{r} \end{aligned}$$

mais permet d'obtenir simplement :

$$E^{2D}_{courb}[\theta + \delta\theta] - E^{2D}_{courb}[\theta] = \frac{\kappa}{4} \iint \left(2c[\theta]\delta c[\theta] \, |\nabla\theta| + c[\theta]^2 \mathbf{n} \, |\nabla\delta\theta| \right) d\mathbf{r}. \tag{D.4}$$

Pour continuer, il nous faut évaluer $\delta c[\theta]$:

$$c[\theta] = -\nabla.\frac{\nabla\theta}{|\nabla\theta|} \quad \Rightarrow \quad c[\theta+\delta\theta] = -\nabla.\left(\frac{\nabla\theta+\nabla\delta\theta}{|\nabla\theta|}\left(1-\frac{\nabla\theta.\nabla\delta\theta}{|\nabla\theta|}\right)\right) \tag{D.5}$$

soit, au premier ordre en $\delta\theta$:

$$\delta c[\theta] = -\nabla.\left(\left(\mathbf{I}-\mathbf{n}\otimes\mathbf{n}\right)\frac{\nabla\delta\theta+\nabla\delta\theta}{|\nabla\theta|}\right). \tag{D.6}$$

L'opérateur $\mathbf{I}-\mathbf{n}\otimes\mathbf{n}$ n'est rien d'autre que le projecteur sur l'espace localement tangent à l'interface. Nous pouvons donc écrire :

$$\delta c[\theta] = -\nabla.\left(\mathbf{t}\left(\mathbf{t}.\frac{\nabla\delta\theta+\nabla\delta\theta}{|\nabla\theta|}\right)\right). \tag{D.7}$$

Dès lors, le calcul de la force de courbure ne présente plus de difficulté majeure. Après quelques intégrations par partie, nous obtenons en effet :

$$\frac{\delta E^{2D}_{courb}}{\delta\theta} = -\frac{\kappa}{4}\nabla.\left(\frac{\mathbf{t}}{|\nabla\theta|}\mathbf{t}.\nabla\left(2c[\theta]\,|\nabla\theta|\right)+c[\theta]^2\mathbf{n}\right). \tag{D.8}$$

Enfin, nous allons utiliser l'hypothèse de parallèlisme des isocontours du champ de phase, que nous avons discutée dans l'annexe B. Rappelons que cette hypothèse se traduit mathématiquement par :

$$\nabla.\mathbf{t} = 0 \quad \Rightarrow \quad \nabla.\left(c\mathbf{n}\right) = 0 \tag{D.9}$$

où nous avons utilisé la relation :

$$\frac{\partial\mathbf{t}}{\partial s} = c\mathbf{n}. \tag{D.10}$$

Dès lors, la définition même de la courbure nous donne :

$$\mathbf{n}.\nabla c = c^2. \tag{D.11}$$

Enfin, nous avons :

$$\begin{aligned}
\mathbf{t}.\nabla\left(|\nabla\theta|\right) &= \nabla.\left(|\nabla\theta|\,\mathbf{t}\right) - |\nabla\theta|\,\nabla.\mathbf{t} \\
&= \nabla.\left(\nabla\theta\times\mathbf{z}\right) \\
&= \mathbf{z}.\left(\nabla\times\nabla\theta\right) - \nabla\theta.\nabla\times\mathbf{z} \\
&= 0.
\end{aligned} \tag{D.12}$$

Le parallélisme des isocontours intervient dès la première ligne. Nous avons également utilisé la définition de $\mathbf{t}$ donnée page 185. Ici, $\mathbf{t}.\nabla$ représente la

variation le long de la coordonnée tangentielle. En utilisant ces 2 derniers résultats, la force de courbure devient :

$$\mathbf{f}^{2D}_{courb}[\theta] = \left(-\kappa\left(\frac{c^3}{2} + \mathbf{t}.\nabla(\mathbf{t}.\nabla c)\right) - c\zeta\right)\mathbf{n} \tag{D.13}$$

ce qui est bien l'expression que nous avons utilisée dans le texte.

D.2 La force de Lagrange

La contribution énergétique du multiplicateur de LAGRANGE est quant à elle donnée par :

$$E_{Lag} = \iint \zeta(s)\frac{|\nabla\theta|}{2}d\mathbf{r}. \tag{D.14}$$

Le principe du calcul est le même que précédemment. Ici toutefois, il convient de tenir compte de la dépendance implicite de ζ par rapport à la position de l'interface :

$$\mathbf{f}^{2D}_{Lag}[\theta] = \frac{\delta E_{Lag}}{\delta\zeta}\nabla\zeta + \frac{\delta E_{Lag}}{\delta\theta}\nabla\theta \tag{D.15}$$

Au premier ordre en θ, nous aurons donc :

$$\begin{aligned}\mathbf{f}^{2D}_{Lag}[\theta] &= \frac{|\nabla\theta|}{2}\nabla\zeta - \nabla.\left(\frac{\zeta}{2}\mathbf{n}\right)\nabla\theta \qquad \text{(D.16)}\\ &= \left(\left(\mathbf{I} - \mathbf{n}\otimes\mathbf{n}\right)\nabla\zeta - \zeta\mathbf{n}\nabla\mathbf{n}\right)\frac{|\nabla\theta|}{2}\\ &= \left(\mathbf{t}\left(\mathbf{t}.\nabla\zeta\right) + c\zeta\mathbf{n}\right)\frac{|\nabla\theta|}{2}\end{aligned}$$

On voit ainsi apparaître une composante normale et une autre tangentielle dans cette contribution à la force.

Annexe E

Calculs analytiques pour la force de portance

Dans cette annexe nous détaillons les calculs nécessaires à l'étude de la force de portance (chapitre 1)[1]. Nous commençons par prouver que les équations de l'élasticité sont bien locales dans la limite des faibles épaisseurs de substrat, puis nous présentons les étapes intermédiaires du calcul perturbatif que nous avons effectué pour les sphères et les vésicules dans la limite des faibles déformabilités du substrat.

E.1 Elasticité du substrat

Le point de départ du calcul est constitué par les équations générales d'équilibre des corps élastiques :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = 0 \tag{E.1}$$

avec :

$$\sigma_{ij} = \frac{E}{1+\sigma}\left(u_{ik} + \frac{\sigma}{1-2\sigma} u_{ll}\delta_{ik}\right) \tag{E.2}$$

qui s'inverse en :

$$u_{ik} = \frac{1+\sigma}{E}\sigma_{ik} - \frac{\sigma}{E}\sigma_{ll}\delta_{ik} \tag{E.3}$$

qui n'est rien d'autre que la loi de Hooke. Dans ces relations, u_{ik} est le tenseur de déformation du substrat, défini par $u_{ik} = \partial_i u_k$ avec u_k la déformation du solide, E le module d'Young et σ le coefficient de Poisson. Dans le cas de déformations planes dans le plan (xOy), on a :

1. Les calculs ont été initialement proposés par Chaouqi Misbah.

$$\begin{cases} \frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial y} = 0 \\ \frac{\partial \sigma_{yx}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial y} = 0 \end{cases} \tag{E.4}$$

dont la solution générale peut sécrire en terme de la fonction d'Airy $\chi(x,y)$:

$$\begin{cases} \sigma_{xx} = \frac{\partial^2 \chi}{\partial y^2} \\ \sigma_{xy} = -\frac{\partial^2 \chi}{\partial x \partial y} \\ \sigma_{yy} = \frac{\partial^2 \chi}{\partial x^2} \end{cases} \tag{E.5}$$

La fonction d'Airy est une fonction biharmonique telle que $\Delta\Delta\chi = 0$. La solution de cette équation s'écrit :

$$\chi = \left[(Ay + B)e^{qy} + (Cy + D)e^{-qy}\right] e^{\imath qx} \tag{E.6}$$

avec A, B, C et D des constantes à déterminer. Pour ce faire, nous allons ré-exprimer les contraintes grâce aux relations E.5 :

$$\begin{cases} \sigma_{xx} = \left[(2Aq + (Ay + B)q^2)e^{qy} + (-2Cq + (Cy + D)q^2)e^{-qy}\right] e^{\imath qx} \\ \sigma_{xy} = -\imath q \left[(A + (Ay + B)q)e^{qy} + (C - (Cy + D)q)e^{-qy}\right] e^{\imath qx} \\ \sigma_{yy} = -q^2 \left[(Ay + B)e^{qy} + (Cy + D)e^{-qy}\right] \end{cases} \tag{E.7}$$

et nous obtenons les déplacements correspondants grâce à la loi de Hooke E.3 :

$$\begin{cases} u_x = -\frac{\imath(1+\sigma)}{E} \left[(2 + qy - 2\sigma)e^{qy}A + qe^{qy}B + (-2 + qy + 2\sigma)e^{-qy}C + qe^{-qy}D\right] e^{\imath qx} \\ u_y = \frac{1+\sigma}{E} \left[(1 - qy - 2\sigma)e^{qy}A - qe^{qy}B + (1 + qy - 2\sigma)e^{-qy}C - qe^{-qy}D\right] e^{\imath qx} \end{cases} \tag{E.8}$$

Les conditions aux limites sur la partie inférieure du substrat $(y = -L)$:

$$\begin{cases} u_x(y = -L) = 0 \\ u_y(y = -L) = 0 \end{cases} \tag{E.9}$$

et sur l'interface avec le fluide vont nous permettre d'exprimer les 4 constantes A, B, C et D. Au niveau de l'interface avec le fluide, seules les contraintes sont connues. En supposant que la déformation est suffisamment faible, nous pouvons exprimer ces contraintes en $y = 0$:

$$\begin{cases} \sigma_{nn}(y = 0) = F_q e^{\imath qx} \\ \sigma_{nt}(y = 0) = G_q e^{\imath qx} \end{cases} \tag{E.10}$$

Finalement, nous obtenons les solutions suivantes :

$$\begin{cases} A = qe^{2qL}\left[\left(1+3e^{2qL}-4\sigma-2qL\right)F_q + \imath\left((3-4\sigma)e^{2qL}+2qL+1\right)G_q\right]/\mathcal{D} \\ B = \left[\left((4\sigma-3)e^{2qL}+2\left(-4\sigma^2+6\sigma+qL-q^2L^2\right)-5\right)F_q \right. \\ \qquad \left. +2\imath\left(-6\sigma+2+4\sigma^2+q^2L^2\right)G_q\right]/\mathcal{D} \\ C = q^2\left[\left(4\sigma-3-(1+2qL)e^{2qL}\right)F_q + \imath\left(3-4\sigma+(1-2qL)e^{2qL}\right)G_q\right]/\mathcal{D} \\ D = 2\left[\left(\left(\sigma(6-4\sigma)-qL-q^2L^2-\frac{5}{2}\right)e^{2qL}+\left(2\sigma-\frac{3}{2}\right)\right)F_q \right. \\ \qquad \left. +\imath e^{2qL}\left(-2+6\sigma-4\sigma^2-q^2L^2\right)G_q\right]/\mathcal{D} \end{cases} \tag{E.11}$$

avec :

$$\mathcal{D} = q^2\left[3-4\sigma+4e^{2qL}\left(q^2L^2+4\sigma^2-6\sigma+\frac{5}{2}\right)+(3-4\sigma)e^{4qL}\right]. \tag{E.12}$$

Pour fermer ce problème, il ne nous reste plus qu'à écrire $h(x) = h_q e^{\imath qx}$, et nous obtenons finalement une relation complexe entre h_q, le déplacement de l'interface, et les contraintes appliquées, F_q et G_q. En effet, en écrivant $h(x) = u_y(y=0)$ on obtient :

$$\begin{aligned} h_q = \{ & e^{2qL}\left[\left(+6\sigma^2-8\sigma^3+8\sigma F_q-6\right)F_q+\left(2\imath\sigma^2-8\sigma^3+7\imath\sigma-3\imath\right)G_q\right]e^{2qL} \\ & +\left[\left(6+8\sigma^3-6\sigma^2-8\sigma\right)F_q+\left(7\imath\sigma+2\imath\sigma^2-8\imath\sigma^3-3\imath\right)G_q\right]e^{-2qL} \\ & +\left[-8\sigma^2qL+8qL\right]F_q+\left[4\imath\sigma q^2L^2+16\imath\sigma^3-14\imath\sigma-4\imath\sigma^2+6\imath+4\imath q^2L^2\right]G_q\} : \\ & \left[\left(16\sigma^2-24\sigma+10+4q^2L^2+(3-4\sigma)\left(e^{2qL}+e^{-2qL}\right)\right)qE\right] \end{aligned} \tag{E.13}$$

Cette expression est bien entendu inexploitable sous cette forme. Nous allons donc supposer que seules des forces normales agissent sur la paroi (G_q=0) et nous allons considérer deux limites.

Substrat de faible épaisseur

Dans ce cas, nous avons $qL \to 0$. Au premier ordre, on obtient :

$$h_q = \left(\frac{(2\sigma-1)(\sigma+1)}{E(\sigma-1)}L + \frac{(4\sigma-1)(\sigma+1)\sigma L}{3E(\sigma-1)^2}(qL)^2\right)F_q \tag{E.14}$$

qui donne dans l'espace réel :

$$F(x) = \frac{E}{L}\frac{\sigma-1}{(2\sigma-1)(\sigma+1)}h(x). \tag{E.15}$$

Nous avons utilisé une telle relation dans notre simulation.

Substrat de forte épaisseur

Dans ce cas, on a plutôt $qL \to \infty$, qui correspond à un substrat infiniment plus profond que les déformations de l'interface. Dans ce cas, on obtient :

$$h_q = \frac{2(1-\sigma^2)}{E}\frac{F_q}{|q|} \tag{E.16}$$

qui donne dans l'espace réel :

$$F(x) = \frac{E}{2\pi(1-\sigma^2)}\mathcal{P}\int \frac{\partial h/\partial x'}{x-x'}dx' \tag{E.17}$$

avec $\mathcal{P}$ la partie principale de Cauchy. On retrouve bien un comportement local, caractéristique des équations des milieux continus.

E.2 Calcul perturbatif pour la force de portance

Nous allons nous restreindre au cas bidimensionnel, et nous allons supposer que les effets inertiels sont négligeables. Ce calcul s'inspire d'une étude effectuée par SEKIMOTO dans le cas d'un cylindre couvert d'une couche de polymères, en translation uniforme au voisinage d'un substrat plan lui couvert d'une couche de polymères. Ici, nous considérons le cas d'un cylindre soumis à un cisaillement, ce qui introduit une vitesse de rotation qui n'intervenait pas dans le calcul original.

Si la distance entre le cylindre et le substrat est suffisamment faible, l'hypothèse de lubrification est valable, et les équations de Stokes se réduisent à :

$$\begin{cases} \partial_{yy} v_x - P'(x) = 0 \\ \partial_x v_x + \partial_y v_y = 0 \end{cases} \tag{E.18}$$

Si on désigne par $d(x)$ le profil inférieur du cylindre (ou de la vésicule), et par $h(x)$ celui du substrat déformé, alors les conditions aux limites sur la vitesse s'écrivent :

$$\begin{cases} v_x(x,d(x)) = -V_r \\ \\ v_y(x,d(x)) = -V_r d'(x) \end{cases} \qquad \begin{cases} v_x(x,h(x)) = -V_t \\ \\ v_y(x,h(x)) = -V_t h'(x) \end{cases} \tag{E.19}$$

où $f'(x)$ désigne la dérivée de f, V_r et V_t étant respectivement la vitesse de rotation et de translation du cylindre ou de la vésicule. Effet, dans la limite

d'un profil suffisamment régulier, on peut écire $\mathbf{t} = \mathbf{x} + d'(x)\mathbf{y}$. En conséquence du paragraphe précédent, il est raisonnable de postuler une relation linéaire entre le profil de l'interface et la pression dans l'intervalle entre le substrat et le cylindre. En toute rigueur, la force exercée sur le substrat est donnée par :

$$\mathbf{F} = \int_S \left(-PI + \eta\left(\nabla\mathbf{v} + \nabla\mathbf{v}^T\right).\mathbf{n}\right) dS. \tag{E.20}$$

mais pour simplifier, nous n'allons considérer que la pression. La relation entre le profil et la pression est donnée par :

$$h(x) = -KP(x) \tag{E.21}$$

avec :

$$K = \frac{E}{L}\frac{1-\sigma}{(12\sigma)(1+\sigma)} \tag{E.22}$$

comme cela a déjè été mentionné dans le texte (page 134, equation (2.10)). L'intégration directe de l'équation de Stokes nous donne :

$$v_x(x,y) = \frac{1}{2\eta}\frac{dP(x)}{dx}y^2 + A(x)y + B(x) \tag{E.23}$$

avec $A(x)$ et $B(x)$ deux fonctions à déterminer grâce aux conditions aux limites. On obtient sans peine :

$$A(x) = -\frac{V_r - V_t}{d(x) - h(x)} - \frac{1}{2\eta}\frac{dP(x)}{dx}(d(x) + h(x)) \tag{E.24}$$

et

$$B(x) = \frac{V_r h(x) - V_t d(x)}{d(x) - h(x)} + \frac{1}{2\eta}\frac{dP(x)}{dx}d(x)h(x). \tag{E.25}$$

Nous avons vérifié que nous obtenions bien le même résultat qu'Isabelle CANTAT dans la limite d'un substrat rigide ($h(x) = 0$). La condition d'incompressibilité nous permet alors d'obtenir la composante y de la vitesse :

$$v_y(x,y) = -\frac{1}{6\eta}\frac{d^2P(x)}{dx^2}y^3 - \frac{dA}{dx}\frac{y^2}{2} - \frac{dB}{dx}y + C(x). \tag{E.26}$$

La fonction $C(x)$ est déterminée par la troisième condition aux limites en $y = d(x)$. On obtient :

$$\begin{array}{c} v_y(x,y) = -\frac{1}{6\eta}\frac{d^2P(x)}{dx^2}\left(y^3 - h(x)^3\right) - \frac{1}{2}\frac{dA}{dx}\left(y^2 - h(x)^2\right) \\ -\frac{dB}{dx}\left(y - h(x)\right) - V_t h'(x) \end{array} \tag{E.27}$$

Finalement, on utilise la dernière condition aux limites pour obtenir la relation de fermeture qui nous permettra de déterminer le champ de pression entre le substrat et le cylindre (ou la vésicule) :

$$\frac{1}{12\eta}\frac{dP(x)}{dx}\left(d(x)-h(x)\right)^3+\frac{V_r+V_t}{2}\left(d(x)-h(x)\right)=\tilde{Q} \tag{E.28}$$

avec $\tilde{Q}$ une constante d'intégration qui peut être interprétée comme l'écoulement moyen dans l'intervalle. La pression doit obéir à cette équation pour que la vitesse vérifie bien les conditions aux limites. Il est important de remarquer que seule la largeur $d(x)-h(x)$ de l'intervalle intervient dans cette équation.

Il est alors utile d'introduire quelques variables sans dimensions qui vont nous permettre d'alléger l'écriture. Nous allons noter d_0 la distance minimale entre le cylindre ou la vésicule et la position initiale du substrat, et R le rayon de courbure typique de l'interface de l'objet considéré. En prenant comme échelle de longueur $\sqrt{2Rd_0}$ dans la direction x, d_0 dans la direction y et $V_m = (V_r+V_t)/2$ pour échelle de vitesse et $\eta V_m\sqrt{2Rd_0}/d_0^2$ pour échelle de pression, on obtient :

$$\frac{1}{12}\frac{dP(x)}{dx}\left(d(x)-h(x)\right)^3+\frac{V_r+V_t}{2}\left(d(x)-h(x)\right)=Q \tag{E.29}$$

Le profil du substrat est relié à la pression par la relation suivante :

$$h(x)=-\upsilon P(x) \tag{E.30}$$

avec

$$\upsilon=\frac{\eta V_m\sqrt{2Rd_0}}{Kd_0^3}. \tag{E.31}$$

Ce paramètre tend vers 0 quand $K\to\infty$, c'est-à-dire quand le substrat devient indéformable. Nous allons donc utiliser ce paramètre comme paramètre perturbatif. Nous allons pouvoir déterminer la pression grâce à l'équation E.29. Nous serions alors en mesure de calculer le champ de vitesse dans l'intervalle. En toute rigueur, la force exercée sur le cylindre ou la vésicule serait alors donnée par :

$$\mathbf{F}=\int_S\left(-PI+\eta\left(\nabla\mathbf{v}+\nabla\mathbf{v}^T\right).\mathbf{n}\right)dS. \tag{E.32}$$

Cependant, par souci de cohérence avec les approximations précédentes, nous n'allons considérer que la pression ici. Nous allons donc écrire :

$$P(x)=P^{(0)}(x)+\upsilon P^{(1)}(x)+\upsilon^2P^{(2)}(x)+\upsilon^3P^{(3)}(x)+\mathcal{O}(\upsilon^4) \tag{E.33}$$

et

$$Q = Q^{(0)}(x) + \upsilon Q^{(1)}(x) + \upsilon^2 Q^{(2)}(x) + \upsilon^3 Q^{(3)}(x) + \mathcal{O}(\upsilon^4) \tag{E.34}$$

et résoudre l'équation E.29 ordre par ordre. Il reste bien sûr à préciser une forme particulière pour le profil du cylindre ou de la vésicule, et c'est-à-partir de ce point que nous allons devoir séparer l'étude.

E.2.1 Le cas du cylindre

Si la distance entre le substrat et le cylindre et suffisamment faible, une approximation quadratique est raisonnable pour le profile inférieur du cylindre :

$$d(x) = d_0 + \frac{x^2}{2R}. \tag{E.35}$$

Ordre 0

L'équation E.29 devient :

$$d(x)^3 \frac{dP^{(0)}(x)}{dx} + 12 d(x) = Q^{(0)} \tag{E.36}$$

qui nous donne :

$$P^{(0)}(x) = \frac{4x}{(1+x^2)^2} \quad \text{et} \quad Q^{(0)} = 16. \tag{E.37}$$

Cette contribution est antisymétrique, et donne bien une contribution nulle quand elle est intégrée sur toute la partie inférieure du cylindre, qui est symétrique. On retrouve bien le résultat attendu : la force de portance est nulle sur un objet symétrique.

Ordre 1

L'équation E.29 devient :

$$d(x)^3 \frac{dP^{(1)}(x)}{dx} + 3d(x)^2 P^{(0)}(x) \frac{dP^{(0)}(x)}{dx} + 12 P^{(0)}(x) = Q^{(1)} \tag{E.38}$$

qui nous donne :

$$P^{(1)}(x) = \frac{96}{5} \frac{1}{(1+x^2)^5} - \frac{12}{(1+x^2)^4} \quad \text{et} \quad Q^{(1)} = 0. \tag{E.39}$$

Cette fois nous avons une contribution symétrique, et nous obtenons :

$$F_{port}^{(1)} = \int_{-\infty}^{+\infty} P^{(1)}(x)dx = \frac{3\pi}{2} \tag{E.40}$$

Ordre 2

Nous obtenons encore une contribtion nulle à cet ordre.

Ordre 3

On obtient $Q^{(3)} = 0$ et

$$P^{(3)}(x) = \frac{1}{134750}\frac{p_{12}(x)}{(1+x^2)^{11}} \tag{E.41}$$

pour la pression, avec $p_{12}(x)$ un polynôme d'ordre 12 : $p_{12}(x) = 146215498x^2 + 53460165x^4 + 177140700x^6 + 145641045x^8 + 62046138x^{10} + 108322283x^{12} - 22726357$.

Intégré sur toute la surface, nous obtenons :

$$F_{port}^{(3)} = -\frac{2283\pi}{128} \tag{E.42}$$

Cette contribution est donc attractive, mais elle reste totalement négligeable devant la contribution d'ordre 1. En pratique, nous nous sommes limités au premier ordre. Nous avons également calculé les champ de vitesse à chaque ordre, et nous avons vérifié que les résultats que nous présentons dans le texte ne sont pas modifiés par la prise en compte de ces effets.

Finalement, nous avons donc bien une force de portance répulsive quand le substrat est déformable.

E.2.2 Le cas des vésicules

Un paramètre important dans ce cas est l'asymétrie de la vésicule. Dans le cas de l'approche analytique de la thèse d'Isabelle CANTAT, la partie inférieure de la vésicule a été modélisée avec 2 exponentielles de courbures différentes. Dans notre cas, cette modélisation n'est pas adaptée puisqu'elle introduirait une forte singularité de courbure au niveau de la jonction des deux exponentielles[2]. Nous avons modifié l'équation précédente pour $d(x)$ en introduisant 2 branches de paraboles de courbures différentes se raccordant en 0 :

$$d(x) = \begin{cases} d_0 + x^2/(2R) & \text{si } x \leq 0 \\ d_0 + x^2/(2\varpi R) & \text{si } x \geq 0 \end{cases} \tag{E.43}$$

2. Dans le cas cité ici, la vésicule était confinée au voisinage du substrat par un potentiel d'adhésion. Les courbures dont il est question ici étaient donc assez éloignées l'une de l'autre pour que le raccord ne pose pas réellement de problème.

Le paramètre heuristique ϖ suffit à introduire une asymétrie. Les résultats précédents s'adaptent alors sans difficulté. A l'ordre 0 par exemple, nous obtenons :

$$P^{(0)}(x) = \begin{cases} 4x/(1+x^2)^2 & \text{si } x \leq 0 \\ 4x/(1+\varpi x^2)^2 & \text{si } x \geq 0 \end{cases} \tag{E.44}$$

La force correspondante vaut alors $2\,(1/\sqrt{\varpi} - 1)$ qui s'annule bien pour $\varpi = 1$. En variables dimensionnées, la force de portance sera donnée par :

$$F^{(0)}_{port} \propto \frac{\eta V_m R}{d_0}. \tag{E.45}$$

Pour fermer notre problème, il faudrait exprimer la vitesse moyenne en fonction de d_0, ce qui est difficile comme nous l'avons expliqué dans le texte (voir chapitre 2).

Bibliographie

[1] Manouk Abkarian, *Dynamique et formes d'enveloppes déformables sous champs externes : vésicules et globules rouges*, thèse de l'Université Joseph Fourier (2002)

[2] Manouk Abkarian, Colette Lartigue et Annie Viallat, *Motion of phospholipidic vesicles along an inclined plane: sliding and rolling*, Phys. Rev. E **63**, 041906 (2001)

[3] Manouk Abkarian, Colette Lartigue et Annie Viallat, *Tank treading and unbinding of deformable vesicles in shear flow: determination of the lift force*, Phys. Rev. Lett. **88**, 068103 (2002)

[4] Y. Amarouchene, D. Bonn, J. Meunier et H. Kellay, *Inhibition of the finite-time singularity during droplet fission of a polymeric fluid*, Phys. Rev. Lett. **86**, 3558 (2001)

[5] Y. Amarouchene et H. Kellay, *Polymers in 2D turbulence: suppression of large scale fluctuations*, Phys. Rev. Lett. **89**, 104502 (2002)

[6] M. I. Angelova et D. S. Dimitrov, *Liposome electroformation*, Faraday Discuss. Chem. Soc. **81**, 303 (1986)

[7] D. Barthes-Biesel et A. Acrivos, *Deformation and burst of a liquid droplet freely suspended in a linear shear field*, J. Fluid Mech. **61**, 1-21 (1973)

[8] D. Barthes-Biesel, *Motion of spherical microcapsule freely suspended in a linear shear flow*, J. Fluid Mech. **100**, 831-853 (1980)

[9] D. Barthes-Biesel et J. M. Rallison, *The time dependent deformation of a capsule freely suspended in a linear shear flow*, J. Fluid Mech. **113**, 251-267 (1981)

[10] D. Barthes-Biesel et H. Sgaier, *Role of membrane viscosity in the orientation and deformation of a spherical capsule suspended in shear flow*, J. Fluid Mech. **160**, 119 (1985)

[11] G. K. Batchelor, *The stress system in a suspension of force-free particles*, J. Fluid Mech. **41**, 545-570 (1970)

[12] J. Beaucourt, F. Rioual, T. Seon, T. Biben et C. Misbah, *Steady to unsteady dynamics of a vesicle in a flow*, Phys. Rev. E **69**, 011906 (2004)

[13] J. Beaucourt, T. Biben et C. Misbah, *Optimal lift force on a vesicle near a deformable substrate*, Europhys. Lett. **67**, 676-682 (2004)

[14] J. Beaucourt, T. Biben et C. Verdier, *Elongation and burst of axisymmetric viscoelastic droplets: a numerical study*, Phys. Rev. E (2005)

[15] J. Beaucourt, T. Biben, C. Verdier et A. Leyrat, *Modeling breakup and relaxation of Newtonian droplets using the advected phase field approach*, soumis à Phys. Fluids (2005)

[16] B. J. Bentley et L. G. Leal, *An experimental investigation of drop deformation and breakup in steady two-dimensional linear flow*, J. Fluid Mech. **167**, 241 (1986)

[17] Berend-Jan De gans, Paul C. Duineveld et Ulrich S. Schubert, *Inkjet printing of polymers: state of the art and future developments*, Adv. Mater. **16**, 203-213 (2004)

[18] T. Biben et C. Misbah, *An advected-field method for deformable entities under flow*, Eur. Phys. J. B **29**, 311-316 (2002)

[19] T. Biben, C. Misbah, C. Verdier et A. Leyrat, *An advected-field approach to the dynamics of fluid interfaces*, Europhys. Lett. **63**, 623 (2003)

[20] T. Biben et C. Misbah, *Tumbling of vesicles under shear flow within an advected-field approach*, Phys. rev. E **67**, 031908 (2003)

[21] J. D. Buckmaster, *Pointed bubbles in slow viscous flow*, J. Fluid Mech. **55**, 385-400 (1972)

[22] J. D. Buckmaster et J. E. Flaherty, *The bursting of two-dimensional drops in slow viscous flow*, J. Fluid Mech. **60**, 625-639 (1972)

[23] R. Byron Bird, Robert C. Armstrong et Ole Hassager, *Dynamics of polymeric liquids. Volume 1, fluid mechanics. Volume 2, Kinetic theory*, John Wiley & Sons, New York (1976)

[24] Rodica Borcia et Michael Bestehorn, *Phase-field model for Marangoni convection in liquid-gas systems with a deformable interface*, Phys. Rev. E **67**, 066307 (2003)

[25] Isabelle Cantat et Chaouqi Misbah, *Lift force and dynamical unbinding of adhering vesicles under shear flow*, Phys. Rev. Lett. **83**, 880 (1999)

[26] Isabelle Cantat, *Dynamique de vésicules en adhésion*, thèse de l'Université Joseph Fourier (1999)

[27] Manfredo P. Do Carmo, *Differential geometry of curves and surfaces*, *Prentice Hall* (1976)

[28] M. Carrega, *Les polymères, de la molécule à l'objet*, *EDP Sciences*, Les Ulis (1999)

[29] K. Chang et W. Olbricht, *Experimental studies of the deformation and breakup of a synthetic capsule in steady and unsteady simple shear flow*, J. Fluid Mech. **250**, 609 (1993)

[30] Y. C. Chang, T. Y. Hou, B. Merriman et S. Osher, *A level set formulation of Eulerian interface capturing methods for incompressible fluid flows*, J. Comput. Phys. **124**, 449-464 (1996)

[31] M. D. Chilcott et J. M. Rallison, *Creeping flow of dilute polymer solutions past cylinders and spheres*, J. Non-Newton. Fluid Mech. **29**, 381-432 (1988)

[32] Itai Cohen, Michael P. Brenner, Jens Eggers et Sidney R. nagel, *Two fluid drop snap-off problem: experiment and theory*, Phys. Rev. Lett. **83**, 1147 (1999)

[33] *Microfluidique*, sous la direction de S. Colin, Lavoisier 2004.

[34] Fabienne Colle-Paillot , *Mouvement et déformation d'une capsule bio-artificielle au sein d'un écoulement en petit tube*, thèse de l'Université Paul Sabatier de Toulouse (2002)

[35] Joseph B. Collins et Herbert Levine, *Diffuse interface model of diffusion-limited crystal growth*, Phys. Rev. B **31**, 6119 (1985)

[36] Georges-Henry Cottet, *Modèles et calculs d'interfaces*, cours du Master *Mathématiques appliquées*, Université Joseph Fourier, non publié (2003)

[37] Vittorio Cristini, Jerzy Bławzdziewicz et Michael Loewenberg, *Drop breakup in three-dimensional viscous flows*, Phys. Fluids **10**, 1781-1783 (1998)

[38] V. Cristini, S. Guido, A. Alfani, J. Bławzdziewicz et M. Loewenberg, *Drop breakup and fragment size distribution in shear flow*, J. Rheol. **47**, 1283-1298 (2003)

[39] E. R. Damiano, B. R. Duling, K. Ley et T. C. Skalak, *Axisymmetric pressure-driven flow of rigid pellets through a cylindrical tube lined with a deformable porous wall layer*, J. Fluid Mech. **314**, 163-189 (1996)

[40] E. R. Damiano, *The effect of the endothelial-cell glycocalyx on the motion of red blood cells through capillaries*, Microvascular research **55**, 77-91 (1998)

[41] R. A. de Bruijn, *Tipstreaming of drops in simple shear flows*, Chem. Eng. Sci. **48**, 277-284 (1993)

[42] Isabelle Delaby, Benoit Ernst et René Muller, *Drop deformation during elongational flow in blends of viscoelastic fluids. Small deformation theory and comparison with experimental results*, Rheol. Acta **34**, 525-533 (1995)

[43] I. Delaby, B. Ernst, D. Froelich et R. Muller, *Drop deformation in immiscible polymer blends during transient uniaxial elongational flow*, Polymer Engineering and science **36**, 1627-1635 (1996)

[44] Pierre-Gilles de Gennes, *Introduction to polymer dynamics*, Cambridge University Press, (1990)

[45] Pierre-Gilles de Gennes, *Scaling concepts in polymer physics*, *Cornell University Press* (1984)

[46] Jean-Pierre Demailly, *Analyse numérique et équations différentielles*, *Presse Universitaires de Grenoble*, 1996

[47] R. Dimova, U. Seifert, B. Pouligny, S. Förster et H.-G. Döbereiner, *Hyperviscous diblock copolymer vesicles*, Eur. Phys. J. E **7**, 241-250 (2002)

[48] François Divet, *Fluctuations d'une membrane en interaction avec un champ diffusif*, thèse de l'Université Joseph Fourier (2001)

[49] M. Doi et S. F. Edwards, *The theory of polymer dynamics*, *Oxford Science Publication* (1986)

[50] Patrick S. Doyle, Benoît Ladoux et Jean-Marie Viovy, *Dynamics of a tethered polymer in shear flow*, Phys. Rev. Lett. **20**, 4769 (1999)

[51] A. Drochon, *Rheology of dilute suspensions of red blood cells: experimental and theoretical approaches*, Eur. Phys. J. **22**, 155-162 (2003)

[52] Jason P. Dworkin, David W. Deamer, Scott A. Sandford et Louis J. Allamandola, *Self-assembling amphiphilic molecules: synthesis in simulated interstellar/precometary ices*, PNAS **98**, 815-819 (2001)

[53] Jens Eggers, *Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows*, Rev. Mod. Phys. **69**, 865-929 (1997)

[54] Albert Einstein, *Eine neue Bestimmung der Moleküldimensionen*, Ann. d. Physik **19**, 289 (1896). Correction (le célèbre facteur 5/2...) dans le volume **34**, 591 (1911)

[55] E. Evans et W. Rawicz, *Entropy-driven tension and bending elasticity in condensed fluid membranes*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2094 (1990)

[56] N. Fa, C. M. Marques, E. Mendes et A. P. Schröder, *Rheology of giant vesicles: a micropipette study*, Phys. Rev. Lett. **92**, 108103 (2004)

[57] Ben Fabry, Geoffrey N. Maksym, James P. Butler, Michael Glogauer, Daniel Navajas et Jeffrey J. Fredberg, *Scaling the microrheology of living cells*, Phys. Rev. Lett. **87**, 148102 (2001)

[58] J. Feng et S. Weinbaum, *Lubrication theory in highly compressible porous media: the mechanics of skiing, from red cells to human*, J. Fluid Mech. **422**, 281-317 (2000)

[59] Documentation et librairies disponibles à l'adresse suivante : http://www.fftw.org/.

[60] Thomas M. Fischer, Marianne Stöhr-Liesen et Holger Schmid-Schönbein, *The red cell as a fluid droplet: tank tread-like motion of the human erythrocyte membrane in shear flow*, Science **202**, 894 (1978)

[61] R. Folch, J. Casademunt, A. Hernández-Machado et L. Ramírez-Piscina, *Phase-field model for Hele-Shaw flows with arbitrary viscosity contrast. I - Theoretical approach* et *II - Numerical approach*, Phys. Rev. E **60**, 1724 et 1734 (1999)

[62] Jean-Baptiste Fournier, David Lacoste et Elie Raphaël, *Fluctuation spectrum of fluid membranes coupled to an elastic meshwork: jump of the effective surface tension at the mesh size*, Phys. Rev. Lett. **92**, 018102 (2004)

[63] Y. C. Fung, *Biomechanics: mechanical properties of living tissues*, Springer

[64] William M. Gelbart, Avinoam Ben-Shaul et Didier Roux (éditeurs), *Micelles, Membranes, Microemulsions, and Monolayers*, Springer (1994)

[65] H. L. Goldsmith et R. Skalak, *Hemodynamics*, Annu. Rev. Fluid Mech. **7**, 213-247 (1975)

[66] H. P. Grace, Chem. Eng. Commun. **14**, 225 (1982)

[67] S. Guido et M. Villone, *Three dimensional shape of a drop under simple shear flow*, J. Rheol. **42**, 395-415 (1998)

[68] E. Guyon, J. Hulin et L. Petit, *Hydrodynamique physique*, Savoirs actuels, interédition, édition du CNRS, Paris (1991)

[69] J.-W. Ha et L. G. Leal, *An experimental study of drop deformation and breakup in extensional flows at high capillary number*, Phys. Fluids **13**, 1568 (2001)

[70] Wolfgang Helfrich, *Elastic properties of lipid bilayers: theory and possible experiments*, Z. Naturforsch. C **28**, 693 (1973)

[71] Wolfgang Helfrich, *Elasticity and thermal undulations of fluid films of amphiphiles*, dans *Liquids at interface*, édité par J. Charvolin, J. F. Joanny et J. Zinn-Justin, Les Houches 1988

[72] Helmut Heller, Michael Schaefer et Klaus Schulten, *Molecular dynamics simulation of a bilayer of 200 lipids in the gel and in the liquid cristal phases*, J. Phys. Chem. **97**, 8343 (1993)

[73] J. R. Henderson, *Discotic amphiphiles*, J. Chem. Phys. **113**, 5965-5970 (2000)

[74] E. J. Hinch et A. Acrivos, *Steady long slender droplets in two-dimensional straining motion*, J. Fluid Mech. **91**, 401 (1979)

[75] Russell Hooper, Matthijs Toose, Christopher W. Macosko et Jeffrey J. Derby, *A comparison of boundary element and finite element methods for modeling axisymetric polymeric drop deformation*, Int. J. Numer. Meth. Fluids **37**, 837-864 (2001)

[76] Russell Hooper, Valmor F. de Almeida, Christopher W. Macosko et Jeffrey J. Derby, *Transient polymeric drop extension and retraction in uniaxial extensional flows*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **98**, 141-168 (2001)

[77] Y. T. Hu, D. J. Pine et L. Gary Leal, *Drop deformation, breakup, and coalescence with compatibilizer*, Phys. Fluid **12**, 484-489 (2000)

[78] Aleš Iglič, Veronika Kralj-Iglič et Henry Hägerstrand, *Amphiphile induced echinocyte-spheroechinocyte transformation of red blood cell shape*, Eur. Biophys. J. **27**, 335 (1998)

[79] Jacob Israelachvili, *Intermolecular and surface forces, second edition*, Academic Press (1992)

[80] D. J. Jeffrey et Y. Onishi, *The slow motion of a cylinder next a plane wall*, Q. J. Mech. Appl. Math. **34**, 129 (1981)

[81] Alain Karma et Wouter-Jan Rappel, *Numerical simulation of three-dimensionnal dendritic growth*, Phys. Rev. Lett. **77**, 4050 (1996)

[82] Alain Karma et Mathis Plapp, *Spiral surface growth without desorption*, Phys. rev. Lett. **81**, 4444 (1998)

[83] K. Kassner, J.-M. Debierre, B. Billia, N. Noël et H. Jamgotchian, *Cellular structures in three-dimensional directional solidification: simulation and analysis*, Phys. Rev. E **57**, 2849 (1998)

[84] K. Kassner et C. Misbah, *A phase-field approach for stress-induced instabilities*, Europhys. Lett. **46**, 217-233 (1999)

[85] Stuart R. Keller et Richard Skalak, *Motion of a tank-treading ellipsoidal particle in a shear flow*, J. Fluid Mech. **120**, 27 (1982)

[86] Ryo Kobayashi, *Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth*, Physica D **63**, 410-423 (1991)

[87] Martin Kraus, Wolfgang Wintz, Udo Seifert et Reinhard Lipowsky, *Fluid vesicles in shear flow*, Phys. Rev. Lett. **77**, 9007 (1996)

[88] David N. Ku, *Blood flow in arteries*, Annu. Rev. Fluid Mech. **29**, 399-434 (1997)

[89] R. Kwok et E. Evans, *Thermoelasticity of large lecithin bilayer vesicles*, Biophys. J. **35**, 637 (1981)

[90] S. H. Lamb, *Hydrodynamics*, Dover publication, New York (1945)

[91] L. D. Landau et E. Lifschitz, *Mécanique des fluides*, Mir Moscou (1989)

[92] L. D. Landau et E. Lifschitz, *Théorie de l'élasticité*, Mir Moscou (1989)

[93] Ronald G. Larson, *Constitutive equations for polymer melts and solutions*, Butterworths, Boston (1988)

[94] D. Lasic, *Les liposomes*, La Recherche **20**, 904 (1989)

[95] M. Lesieur, *Turbulence in fluids. Third revised and enlarged edition*, Kluwer Academics Publishers (1997)

[96] 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*, Phys. Fluids **12**, 269-282 (2000)

[97] Su-Ping Lyu, Frank S. Bates et Christopher W. Macosko, *Coalescence in polymer blends during shearing*, AIChE Journal **46**, 229-238 (2000)

[98] P. L. Maffetone et M. Minale, *Equation of change for ellipsoidal drops in viscous flow*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **78**, 227-241 (1998)

[99] Pier Luca Maffetone et Francesco Greco, *Ellipsoidal drop model for single drop dynamics with non-Newtonian fluids*, J. Rheol. **48**, 83-100 (2003)

[100] Philippe Martin, *Physique statistique des processus irréversibles*, cours de DEA de Physique Statistique et Phénomènes Non Linéaires, ENS Lyon

(2001). Disponible en ligne sur http://cel.ccsd.cnrs.fr/cours/cel-31/cel-31.html

[101] L. Mathivet, S. Cribier et P. F. Devaux, *Shape change and physical properties of giant phospholipid vesicles prepared in the presence of an AC electric field*, Biophys. J. **70**, 1112-1121 (1996)

[102] Bernard Meulenbroek, Cornelis Storm, Volfango Bertola, Christian Wagner, Daniel Bonn et Win van Saarloos, *Intrinsic route to melt fracture in polymer extrusion: a weakly nonlinear subcritical instability of viscoelastic Poiseuille flow*, Phys. Rev. Lett. **90**, 024502 (2003)

[103] L. Miao, B. Fourcade, M. Rao, M. Wortis et R. Zia, *Equilibrium budding and vesiculation in the curvature model of fluid lipid vesicles*, Phys. Rev. A **43**, 6843 (1991)

[104] W. J. Milliken et L. G. Leal, *Deformation and breakup of viscoelastic drops in planar extensional flows*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **40**, 355-379 (1991)

[105] Chaouqi Misbah, en cours de publication

[106] P. Morse et H. Feshbach, *Methods of theoretical physics*, Mc Graw Hill, New York (1953)

[107] Ranjan Mukhopadhyay, Gerald Lim H. W. et M. Wortis, *Echinocyte shapes: bending, stretching and shear determine spicule shape and spacing*, Biophys. J. **82**, 1756 (2002)

[108] J. G. Oldroyd, Proc. Roy. Soc. Lond. A **200**, 523-541 (1950)

[109] P. Olla, *The behaviour of of closed inextensible membranes in linear and quadratic shear flows*, Physica A **278**, 87 (2000)

[110] Patrick Oswald et Pawel Pieranski, *Les cristaux liquides (tome 1)*, Gordon and Breach Science Publishers (2000)

[111] Peter J. O'Toole, Caroline Wolfe, Shab Ladha et Richard J. Cherry, *Rapid diffusion of spectrin bound to a lipid surface*, Biochimica et Biophysica Acta **1419**, 64-70 (1999)

[112] M. Paulischke et G. B. Nash, *Micropipette methods for analysing blood cell rheology and their application to clinical research*, Clinical Hemorheology **13**, 407-434 (1993)

[113] Charles S; Peskin, *The immersed boundary method*, Acta Numerica 1-39 (2002)

[114] Alexander G. Petrov, *The lyotropic state of matter*, Gordon and Breach Science Publishers (1999)

[115] N. Phan-Tien, *Understanding viscoelasticity*, Springer, Berlin (2002)

[116] J. M. Piau, N. El Kissi et B. Tremblay, *Influence of upstream instabilities and wall slip on melt fracture and sharkskin phenomena during silicones extrusion through orifice dies*, J. Non-Newton. Fluid Mech. **34**, 145-180 (1989)

[117] Olivier PIERRE-LOUIS, *Phase field models for step flow*, Phys. Rev. E **68**, 021604 (2003)

[118] S. B. PILLAPAKHAM et P. SINGH, *A level-set method for computing solutions to viscoelastic two-phase flow*, J. Comput. Phys. **174**, 552-578 (2001)

[119] J. L. M. POISEUILLE, *Recherches sur les causes du mouvement du sang dans les vaisseaux capillaires*, Ann. Sci. Nat. **5**, 111-115 (1836)

[120] C. POZRIKIDIS (éditeur), *Modeling and simulation of capsules and biological cells*, Chapman & Hall / CRC (2003)

[121] C. POZRIKIDIS, *Boundary integral and singularity methods for linearized viscous flow*, Cambridge University Press (1992)

[122] C. POZRIKIDIS, *Numerical studies of cusp formation at fluid interfaces in Stokes flow*, J. Fluid Mech. **357** 29-57 (1998)

[123] C. POZRIKIDIS, *Effect of membrane bending stiffness on the deformation of capsules in simple shear flow*, J. Fluid Mech. **440**, 269-291 (2001)

[124] A. R. PRIES, T. W. SECOMB, H. JACOBS, M. SPERANDIO, K. OSTERLOH et P. GAEHTGENS, *Microvascular blood flow resistance: role of endothelial surface layer*, Am. J. Physiol. **273** (Heart Circ. Physiol. **42**), H2272-H2279 (1997)

[125] A. R. PRIES, T. W. SECOMB et P. GAEHTGENS, *The endothelial surface layer*, Eur. J. Physiol **440**, 653-666 (2000)

[126] J. M. RALLISON, *A numerical study of the deformation and burst of a viscous drop in general shear flows*, J. Fluid Mech. **109**, 465-482 (1981)

[127] J. M. RALLISON, *The deformation of small viscous drops and bubbles in shear flows*, Ann. Rev. Fluid Mech. **16**, 45-66 (1984)

[128] J. M. RALLISON et E. J. HINCH, *Do we understand the physics in the constitutive equations ?*, J. Non-Newton. Fluid Mech. **29**, 37-55 (1988)

[129] S. RAMASWAMY et L. G. LEAL, *The deformation of a viscoelastic drop subjected to steady uniaxial extensional flow of a Newtonian fluid*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **85**, 127-163 (1999)

[130] S. RAMASWAMY et L. G. LEAL, *The deformation of a newtonian drop in the uniaxial extensional flow of a viscoelastic liquid*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **88**, 149-172 (1999)

[131] Michael RENARDY, *Mathematical analysis of viscoelastic flows*, Regional conference series in applied mathematics, Philadelphie (2000)

[132] Michael RENARDY, *Some comments on the surface-tension driven breakup (or the lack of it) of viscoelastic jets*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **51**, 97-107 (1993)

[133] Michael RENARDY, *A numerical study of the asymptotic evolution and breakup of Newtonian and viscoelastic jets*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **59**, 267-282 (1995)

[134] Michael RENARDY, *Similarity solutions for jet breakup for various models of viscoelastic fluids*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **104**, 65-74 (2002)

[135] R. Rioual, T. Biben et C. Misbah, *Analytical analysis of a vesicle tumbling under a shear flow*, Phys. Rev. E **69**, 061914 (2004)

[136] R. Roscoe, *On the rheology of a suspension of viscoelastic spheres in a viscous liquid*, J. Fluid Mech. **28**, 273-293 (1967)

[137] Tobias Roths, Christian Friedrich, Michael Marth et Joseph Honerkamp, *Dynamics and rheology of the morphology of immiscible polymer blends - on modeling and simulation*, Rheol. Acta **41**, 211-222 (2002)

[138] Didier Roux et Fabienne Gauffre, *The "Onion" phase and its potential use in chemistry*, ECC Research, web191.petrel.ch/ecc/contents/issues/vol3is2/research2.pdf

[139] E. Sackmann, *Physics of vesicles*, dans *Structure and dynamics of membranes*, édité par R. Lipowski et E. Sackmann, Elsevier, North Holland (1995)

[140] Samuel A. Safran, *Statistical thermodynamics of surfaces, interfaces, and membranes*, Frontiers in Physics (1994)

[141] T. W. Secomb, R. Skalak, N. Ozkaya et J. F. Gross, *Flow of axisymetric red blood cells in narrow capillaries*, J. Fluid Mech. **163**, 405-423 (1986)

[142] Ruben Scardovelli et Stéphane Zaleski, *Direct numerical simulation of free-surface and interfacial flow*, Ann. Rev. Fluid Mech. **31**, 567-603 (1999)

[143] T. W. Secomb, R. Hsu et A. R. Pries, *Motion of red blood cells in a capillary with an endothelial surface layer: effect of flow velocity*, Am. J. Physiol. Heart Circ. Physiol. **281**, H629-H636 (2001)

[144] Udo Seifert, Karin Berndl et Reinhard Lipowsky, *Shape transformations of vesicles: phase diagram for spontaneous-curvature and bilayer coupling models*, Phys. Rev. A **44** (1991)

[145] Udo Seifert, *Fluid membranes in hydrodynamic flow fields: formalism and an application to fluctuating quasispherical vesicles in shear flow*, Eur. Phys. J. B **8**, 405 (1999)

[146] Udo Seifert, *Hydodynamic lift on bound vesicles*, Phys. Rev. Lett **83**, 876 (1999)

[147] K. Sekimoto et L. Leibler, *A mechanism for shear thickening of polymer-bearing surfaces: elasto-hydrodynamic coupling*, Europhys. Lett. **23**, 113-117 (1993)

[148] J. A. Sethian et Peter Smereka, *Level set methods for fluid interfaces*, Annu. Rev. Fluid Mech., **35**, 341-372 (2003)

[149] O.-Y. Shong-Can et W. Helfrich, *Bending energy of vesicles membranes. General expression for the first, second and third variation of the shape energy and application to spheres and cylinders*, Phys. Rev. A **39**, 5280 (1989)

[150] Eric S. G. Shaqfeh, *Purely elastic instabilities in viscometric flows*, Annu. Rev. Fluid Mech. **28**, 129-185 (1996)

[151] Richard Skalak, *Modeling the mechanical behaviour of red blood cells*, Biorheology **10**, 229-238 (1973)

[152] Richard Skalak et Nihat Ozkaya, *Biofluid mechanics*, Annu. Rev. Fluid Mech. **21**, 167-204 (1989)

[153] J. M. Skotheim et L. Mahadevan, *Soft lubrication*, Phys. Rev. Lett **24**, 245509 (2004)

[154] Douglas E; Smith, Hazen P. Babcock, Steven Chu, *Single-polymer dynamics in steady shear flow*, Science **283**, 1724 (1999)

[155] Michael C. Sostarecz et Andrew Belmonte, *Motion and shape of a deformable polymer drop falling through a viscous fluid*, J. Fluid Mech. **497**, 625 (2002)

[156] Michael C. Sostarecz et Andrew Belmonte, *Dynamics inside polymer drops: from dimple to Rayleigh instability to torus*, Phys. Fluids **15**, S5 (2003)

[157] Michael C. Sostarecz et Andrew Belmonte, *Beads-on-string phenomena in wormlike micellar fluids*, Phys. Fluids **16**, L67 (2004)

[158] Dietrich Stauffer et Amnon Aharony, *Introduction to percolation theory*, Taylor & Francis, Londres (2003). Voir plus particulièrement l'annexe A ("*Numerical Techniques*").

[159] H. A. Stone et L. G. Leal, *Relaxation and breakup of an initially extended drop in an otherwise quiescent fluid*, J. Fluid Mech. **198**, 399 (1989)

[160] Howard A. Stone, *Dynamics of drop deformation and breakup in viscous fluids*, Annu. Rev. Fluid Mech. **26**, 65 (1994)

[161] Sreejith Sukumaran et Udo Seifert, *Influence of shear flow on vesicles near a wall: a numerical study*, Phys. rev. E **64**, 011916 (2001)

[162] G. I. Taylor, *The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid*, Proc. R. Soc. **A138**, 41 (1932)

[163] G. I. Taylor, *The formation of emulsions in definable fields of flow*, Proc. R. Soc. **A146**, 501 (1934)

[164] V. E. Terrafon, Y. Dubief, P. Moin, E. S. G. Shaqfeh et S. K. Lele, *Simulated polymer stretch in a turbulent flow using Brownian dynamics*, J. Fluid Mech. **504**, 61-71 (2004)

[165] Edgar Matthijs Toose, *Simulation of the deformation of non-newtonian drops in a viscous flow*, thèse de l'Université de Twente (1997)

[166] Derek C. Tretheway et L. Gary Leal, *Deformation and relaxation of Newtonian drops in planar extensional flows of a Boger fluid*, J. Non-Newtonian Fluid Mech. **99**, 81-108 (2001)

[167] S. Tomotika, *On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous liquid*, Proc. Royal Soc. London **A150**, 322 (1935)

[168] S. Tomotika, *Breaking up of a drop of a viscous liquid immersed in another viscous fluid which is extended at a uniform rate*, Proc. Royal Soc. London **A153**, 302 (1936)

[169] B. A. Toms, Proceedings of the international congress on rheology, Amsterdam (1949)

[170] Oren Traub et Bradford C. Berk, *Laminar shear stress. Mechanisms by which endothelial cells transduce an atheroprotective force*, Arterioscler. Thromb. Vasc. Biol. **18**, 677-685 (1998)

[171] H. Vink et B. R. Duling, *Identification of distinct luminal domains for macromolecules, erythrocytes and leucocytes within mammalian capillaries*, Circ. Res. **79**, 581-589 (1996)

[172] Sheldon Weinbaum, Xiaobing Zhang, Yuefeng Han, Hans Vink et Stephen C. Cowin, *Mechanotransduction and flow across the endothelial glycocalyx*, PNAS **100**, 7988-7995 (2003)

[173] W. Wintz, H.-G. Döbereiner et U. Seifert, *Starfish vesicles*, Europhys. Lett. **33**, 403 (1996)

[174] S. Z. Zhao, X. Y. Xu, A. D. Hughes, S. A. Thom, A. V. Stanton, B; Ariff et Q. Long, *Blood flow and vessel mechanics in a physiologically realistic model of a human carotid arterial bifurcation*, Journal of Biomechanics **33**, 975-984 (2000)

[175] Yihua Zhao, Shu Shien et Sheldon Weinbaum, *Dynamic contact forces on leukocyte microvilli and their penetration of the endothelial glycocalyx*, Biophysical Journal **80**, 1124-1140 (2001)

[176] H. Zhou et C. Pozrikidis, *Deformation of liquid capsules with incompressible interfaces in simple shear flow*, J. Fluid Mech. **283**, 175 (1995)

[177] A. G. Zilman et R. Granek, *Undulation instability of lamellar phases under shear: a mechanism for onion formation?*, Eur. Phys. J. B **11**, 593-608 (1999)

Résumé

L'objectif de cette thèse est de parvenir à décrire la dynamique d'interfaces libres en mécanique des fluides, dans le cadre d'une modélisation par la méthode du champ de phase. La première partie est consacrée à la méthode numérique : le principe général et l'algorithme utilisé sont présentés.

Dans la seconde partie, nous étudions la déformation et la rupture de gouttes viscoélastiques isolées soumises à un écoulement d'élongation axisymétrique. Dans le régime stationnaire, nous avons mis en évidence une inversion de courbure au niveau de l'extrémité de la goutte, due à une localisation des contraintes viscoélastiques. Nous avons montré que les seuils de perte de stabilité des gouttes n'étaient pas affectés par la viscoélasticité, contrairement à la dynamique de rupture.

La dynamique de vésicules bidimensionnelles sous cisaillement fait l'objet de la troisième partie. Nous avons étudié la pertinence de la modélisation en champ de phase pour une vésicule isolée, puis nous avons mis en évidence l'existence d'un maximum dans la force de portance au voisinage d'une paroi déformable. Ces résultats sont supportés par un calcul de lubrification.

Enfin, la dernière partie consiste en une étude préliminaire sur le mélange de liquides diphasiques à deux dimensions.

Mots clefs : *frontières libres, gouttes, liquides diphasiques, méthodes numériques, rhéologie, vésicules, viscoélasticité*

Abstract

The subject of this thesis is the description of the dynamics of free boundaries in fluid mechanics within a phase field approach. The first part is devoted to the numerical method: both the general principle and the algorithm are presented.

In the second part, we study the deformation and breakup of viscoelastic isolated drops submitted to an axisymmetric flow of elongation. In the stationary regime, we highlighted a curvature inversion at the tip of the drop, due to a localization of viscoelastic stresses. We also highlighted the independence of the breakup thresholds with respect to viscoelasticity, whereas the dynamics itself is strongly affected.

The dynamics of two dimensional vesicles under shear flow is considered in the third part of this document. We have studied the limitations of the phase field approach for isolated vesicles. Then, we have highlighted the existence of a maximum in the lift force on the vesicle near a deformable substrate. These results are supported by a lubrication analysis.

Finaly, a preliminary study of the blending of diphasic liquids is presented in the last part, in two dimensions.

Keywords: *free boundaries, drops, diphasic liquids, numerical methods, rheology, vesicles, viscoelasticity*