



**HAL**  
open science

# Emulsions microfluidiques et rouleurs colloïdaux : effets collectifs en matière molle forcée hors-équilibre

Nicolas Desreumaux

► **To cite this version:**

Nicolas Desreumaux. Emulsions microfluidiques et rouleurs colloïdaux : effets collectifs en matière molle forcée hors-équilibre. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2015. Français. NNT : 2015PA066071 . tel-01159549

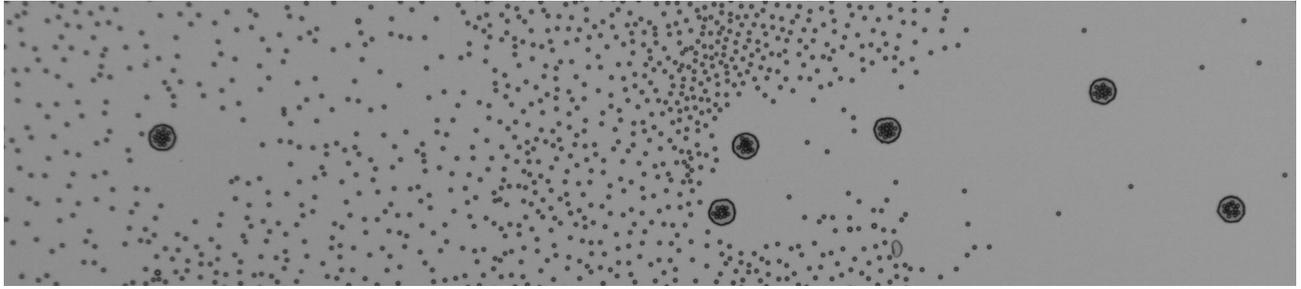
**HAL Id: tel-01159549**

**<https://theses.hal.science/tel-01159549>**

Submitted on 3 Jun 2015

**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.



THÈSE DE DOCTORAT DE  
L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité : SCIENCES PHYSIQUES

École doctorale : PHYSIQUE EN ILE-DE-FRANCE

---

ÉMULSIONS MICROFLUIDIQUES ET ROULEURS  
COLLOÏDAUX : EFFETS COLLECTIFS EN MATIÈRE  
MOLLE FORCÉE HORS-ÉQUILIBRE

---

Présentée par

NICOLAS DESREUMAUX

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Soutenue le 8 avril 2015  
devant la commission d'examen composée de :

M. Denis BARTOLO  
M. Lydéric BOCQUET  
Mme Cécile COTTIN-BIZONNE  
M. Roberto DI LEONARDO  
Mme Marie-Caroline JULLIEN  
M. David SAINTILLAN

Directeur de Thèse  
Examinateur  
Rapporteur  
Examinateur  
Examinateur  
Rapporteur



# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>i</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>1</b>
1.1 Objectifs de la thèse . . . . .	1
1.2 Dynamique collective de suspensions de particules passives en interaction hydrodynamique . . . . .	2
1.2.1 Interactions hydrodynamiques . . . . .	2
1.2.2 Ondes et fluctuations de densité dans les suspensions passives confinées	9
1.3 Ondes et fluctuations de densité dans les liquides actifs polaires . . . . .	18
1.3.1 Approches numériques et théoriques . . . . .	19
1.3.2 Systèmes expérimentaux . . . . .	23
1.4 Effet du désordre sur la dynamique des suspensions . . . . .	26
1.5 Présentation du manuscrit . . . . .	29
<b>2 Montage expérimental pour l'étude d'une assemblée de gouttes en interaction hydrodynamique</b>	<b>35</b>
2.1 Dispositif et outils microfluidiques . . . . .	36
2.1.1 Production de l'émulsion . . . . .	36
2.1.2 Chambre de visualisation . . . . .	37
2.1.3 Contrôle de l'écoulement . . . . .	39
2.2 Acquisition des données . . . . .	39
2.3 Analyse des données . . . . .	40
2.3.1 Détection des particules . . . . .	40
2.3.2 Tracking des particules . . . . .	41
2.3.3 Champ de densité et fluctuations . . . . .	42
2.4 Création de particules de formes arbitraires et de structures ordonnées in-situ	43
<b>3 Ondes de densité dans une émulsion bidimensionnelle advectée</b>	<b>47</b>
3.1 Interactions hydrodynamiques dans une cellule de Hele-Shaw . . . . .	48
3.1.1 Ecoulement dans une cellule de Hele-Shaw . . . . .	48
3.1.2 Perturbation de l'écoulement engendrée par un obstacle cylindrique .	49

3.1.3	Transport de particules et interactions hydrodynamiques . . . . .	51
3.2	Etude expérimentale et théorique de la dynamique d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée . . . . .	53
3.2.1	Introduction . . . . .	53
3.2.2	Article : Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids	53
3.3	Perspectives . . . . .	60
3.4	Annexe . . . . .	62
3.4.1	Ecoulement potentiel dans une cellule de Hele-Shaw . . . . .	62
<b>4</b>	<b>Stabilité et fluctuations de cristaux hydrodynamiques confinés</b>	<b>65</b>
4.1	Modélisation de la dynamique de cristaux hydrodynamiques formés de particules passives ou actives . . . . .	66
4.1.1	Modélisation des interactions hydrodynamiques . . . . .	66
4.1.2	Dynamique grande échelle des cristaux hydrodynamiques . . . . .	71
4.2	Stabilité des cristaux hydrodynamiques : principaux résultats . . . . .	72
4.2.1	Stabilité des cristaux de particules passives entraînées par une force extérieure . . . . .	72
4.2.2	Stabilité des cristaux de particules actives . . . . .	74
4.2.3	Limites du modèle . . . . .	75
4.3	Perspectives . . . . .	75
4.4	Article "Active and driven hydrodynamic crystals" . . . . .	79
<b>5</b>	<b>Un nouveau mécanisme de propulsion : l'électro-rotation de Quincke</b>	<b>91</b>
5.1	L'électro-rotation de Quincke . . . . .	91
5.1.1	Description qualitative de l'électro-rotation de Quincke . . . . .	91
5.1.2	Description quantitative de l'électro-rotation de Quincke . . . . .	92
5.2	Rouleurs colloïdaux . . . . .	95
5.2.1	Principe de propulsion . . . . .	95
5.2.2	Quelques ordres de grandeur . . . . .	97
5.3	Caractérisation de la dynamique individuelle des rouleurs . . . . .	97
5.3.1	Vitesse et orientation . . . . .	98
5.3.2	Déplacement quadratique moyen et temps de diffusion . . . . .	101
<b>6</b>	<b>Systèmes expérimentaux pour l'étude de larges assemblées de rouleurs de Quincke en interaction.</b>	<b>105</b>
6.1	Choix du cadre microfluidique . . . . .	106
6.2	Choix et préparation de la solution et des colloïdes . . . . .	106
6.3	Dispositifs à base de ruban adhésif . . . . .	108
6.3.1	Choix des matériaux . . . . .	108
6.3.2	Assemblage des circuits . . . . .	109

6.3.3	Connectiques fluidiques . . . . .	110
6.3.4	Connectiques électriques . . . . .	110
6.4	Dispositifs fabriqués par lithographie optique . . . . .	113
6.5	Imagerie : microscopie et microscopie en champ sombre . . . . .	113
6.6	Acquisition d'images à haut débit . . . . .	116
6.7	Traitement des données . . . . .	117
6.7.1	Détection des rouleurs . . . . .	117
6.7.2	Reconstitution des trajectoires . . . . .	119
<b>7</b>	<b>Dynamique collective d'une assemblée de rouleurs colloïdaux.</b>	<b>121</b>
7.1	Confinement des particules . . . . .	122
7.1.1	Interaction avec un mur . . . . .	122
7.1.2	Choix de la géométrie de confinement . . . . .	125
7.2	Transition vers le mouvement collectif . . . . .	126
7.2.1	Paramètres de contrôle . . . . .	126
7.2.2	Description qualitative des phases observées . . . . .	126
7.3	Étude détaillée de la phase bande . . . . .	128
7.4	L'état liquide polaire . . . . .	132
7.5	Quelques éléments de théorie . . . . .	133
7.6	Influence de la géométrie du confinement . . . . .	135
7.6.1	Bande rebondissante . . . . .	135
7.6.2	Bande rebondissante et allée de vortex . . . . .	136
7.6.3	Vortex unique . . . . .	137
7.7	Article . . . . .	137
<b>8</b>	<b>Dynamique de rouleurs colloïdaux en milieu hétérogène</b>	<b>143</b>
8.1	Design expérimental d'un milieu désordonné modèle . . . . .	144
8.2	Caractérisation de l'interaction particule/obstacle . . . . .	145
8.3	Influence du désordre sur la dynamique collective des rouleurs . . . . .	150
8.3.1	Présentation de l'expérience . . . . .	150
8.3.2	Description qualitative de la phénoménologie observée . . . . .	151
8.3.3	Étude quantitative de l'influence du désordre . . . . .	153
8.4	Perspectives . . . . .	161
	<b>Bibliographie</b>	<b>163</b>



## Introduction

### 1.1 Objectifs de la thèse

Ce travail de thèse porte sur la dynamique collective de suspensions forcées hors-équilibre. Par *suspension*, on entend ici des systèmes constitués de deux phases, une phase dispersée composée de particules solides ou de gouttes, et une phase liquide continue. Dans la suite du manuscrit, le terme *particule* sera utilisé pour désigner les entités de la phase dispersée, que ce soient des particules solides ou des gouttes.

Les systèmes étudiés dans cette thèse sont tous dissipatifs. Ils consomment de l'énergie (externe ou interne) et la dissipent localement de manière non réversible. La dissipation d'énergie est due principalement à la viscosité du liquide et, dans le cas des systèmes confinés, à la friction avec les parois. Quand l'énergie consommée/injectée est égale en moyenne à l'énergie dissipée, ces systèmes hors-équilibre peuvent présenter des états stationnaires. Si de plus les particules sont en interaction, ces états stationnaires donnent lieu à une dynamique collective complexe. Ce sont ces types d'états que l'on étudie dans cette thèse. Le forçage hors-équilibre peut se faire à l'échelle du dispositif, par exemple en imposant un écoulement ou une force extérieure uniforme (gravité, électrostatique, magnétique, ...), ou à l'échelle des particules par une injection locale d'énergie à l'aide d'un champ extérieur, la consommation d'une énergie interne, ou une réaction locale avec l'environnement. Les particules qui se déplacent sans qu'une force extérieure ne leur soit appliquée sont dites *actives* ou *auto-propulsées*. Les particules qui ne se déplacent que sous l'action d'une force extérieure sont dites *passives*. Les deux types de particules sont considérés dans cette thèse. Le dénominateur commun à toutes mes études est de chercher à comprendre la dynamique grande échelle des suspensions sur la base des symétries des interactions entre les

particules, interactions principalement hydrodynamiques. En particulier, on s'intéresse aux structures spatiales qui se développent dans les suspensions hors-équilibres ainsi qu'à leurs fluctuations temporelles. Pour le cas des particules actives, on étudiera également l'impact de la présence d'obstacles sur la dynamique grande échelle.

Deux types de systèmes sont étudiés expérimentalement et théoriquement dans ce travail de thèse. Le premier consiste en des suspensions de particules passives rigidement confinées au sein d'un film fluide. Les particules pourront être mises en mouvement soit en imposant un écoulement au film fluide soit en appliquant une force extérieure uniforme sur les particules. Le second système consiste en des assemblées bidimensionnelles de particules actives en mouvement dans un fluide globalement au repos. Le manuscrit est écrit de telle sorte à pouvoir lire de manière indépendante les parties relatives à ces deux types de systèmes. Par ailleurs, une courte introduction précède chaque chapitre et la lecture peut donc se faire dans un ordre quelconque.

## 1.2 Dynamique collective de suspensions de particules passives en interaction hydrodynamique

La première partie de mon travail de thèse porte sur la dynamique collective de particules passives en interaction hydrodynamique. Plus précisément, je me suis intéressé aux fluctuations de densité dans des suspensions forcées hors-équilibres dans des géométries quasi-2D. Les chapitres 2, 3 et 4 de ce manuscrit concernent cette partie de mon travail.

Dans cette section, j'introduis tout d'abord la notion d'interaction hydrodynamique entre particules. Le problème de la sédimentation de particules sphériques est brièvement mentionné, à la fois pour son importance historique dans le développement des recherches sur les suspensions hors-équilibres, et pour illustrer le rôle des interactions hydrodynamiques dans la dynamique de ces suspensions. L'effet du confinement sur les interactions hydrodynamiques est ensuite discuté. Dans la seconde partie de cette section, j'offre un bref aperçu des travaux - antérieurs ou contemporains à ma thèse - qui ont été réalisés sur les suspensions de particules passives confinées. Je place les études présentées dans les chapitres 3 et 4 dans ce contexte.

### 1.2.1 Interactions hydrodynamiques

Dans toutes les suspensions étudiées dans ce travail de thèse, les particules de la phase dispersée ont une vitesse translationnelle et/ou rotationnelle non nulle par rapport au fluide. A cause de leur taille finie et de la friction avec le fluide, les particules en mouvement exercent des contraintes locales sur le fluide et génèrent un écoulement. Comme le fluide exerce une force de traînée sur les particules, la vitesse d'une particule dépend de la vitesse locale du fluide. Et puisque le champ de vitesse du fluide au niveau d'une

particule dépend des écoulements engendrés par le mouvement des autres particules de la suspension, on dit que les particules sont en interaction hydrodynamique. L'amplitude et la symétrie des interactions hydrodynamiques dépendent de la présence ou non de confinement.

### 1.2.1.1 Ecoulements de Stokes

Pour toutes les suspensions étudiées dans cette thèse, les effets de viscosité dominent complètement la dynamique par rapport aux effets inertiels. Rappelons que pour un fluide newtonien incompressible caractérisé par un champ de vitesse  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ , une viscosité  $\eta$  et une masse volumique  $\rho$ , les équations générales qui décrivent la dynamique du fluide sont les équations de Navier-Stokes :

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (\text{conservation de la masse}) \quad (1.1)$$

et

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = \eta \Delta \mathbf{v} - \nabla P + \mathbf{f} \quad (\text{P.F.D.}) \quad (1.2)$$

où  $P$  est le champ de pression du fluide, et  $\mathbf{f}$  représente les forces volumiques extérieures pouvant s'appliquer sur le fluide. On définit généralement deux nombres sans dimensions pour comparer les termes d'inertie (termes de gauche dans l'équation Eq. 1.2) au terme de frottement visqueux  $\eta \Delta \mathbf{v}$ . Le nombre de Reynolds est défini comme le rapport entre le terme d'advection de la quantité de mouvement  $|\rho \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v}|$  et le terme des forces visqueuses  $|\eta \Delta \mathbf{v}|$ . Pour un écoulement de vitesse typique  $U$  et de taille caractéristique  $L$ , le nombre de Reynolds de l'écoulement est donné par :

$$Re = \frac{|\rho \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v}|}{|\eta \Delta \mathbf{v}|} \sim \frac{UL}{\nu} \quad (1.3)$$

où  $\nu = \eta/\rho$  est la viscosité cinématique du fluide. Pour les écoulements considérés durant cette thèse, l'échelle de longueur typique est de l'ordre de la dizaine de microns (hauteur du canal et/ou taille typique des particules). La vitesse typique des écoulements (ou de déplacement des particules) est de l'ordre de la centaine de microns par seconde. La viscosité cinématique des liquides utilisés est de l'ordre de celle de l'eau, qui vaut environ  $10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . Le nombre de Reynolds correspondant est de l'ordre de  $10^{-3}$ , ce qui implique que l'on peut négliger le terme  $\rho \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v}$  dans l'équation Eq. 1.2, et que l'on peut de même négliger l'inertie des particules. Le second nombre sans dimension est le nombre de Stokes. On le définit comme le rapport entre le terme d'accélération non stationnaire  $|\partial \mathbf{v} / \partial t|$  et le terme visqueux  $|\nu \Delta \mathbf{v}|$ .

$$St = \frac{|\partial \mathbf{v} / \partial t|}{|\nu \Delta \mathbf{v}|} \quad (1.4)$$

Ce nombre sans dimension peut être vu de manière équivalente comme le rapport entre deux échelles de temps  $\tau_d / \tau$ .  $\tau_d \sim L^2 / \nu$  est le temps caractéristique de diffusion de la

quantité de mouvement par diffusion visqueuse.  $\tau$  est un temps caractéristique des variations de vitesse locale de l'écoulement. Dans le cas des suspensions, on peut voir  $\tau$  comme le temps caractéristique de variation de la vitesse du fluide due au passage d'une particule de vitesse  $U$  et de taille typique  $L$ , d'où  $\tau \sim L/U$ . Le nombre de Stokes a la même loi d'échelle que le nombre de Reynolds,  $St \sim UL/\nu \approx 10^{-3}$ . La limite  $St \ll 1$  peut être interprétée comme le fait que pendant le temps caractéristique  $\tau$ , les variations de vitesse se propagent par diffusion visqueuse sur une distance nettement supérieure à la taille caractéristique  $L$  du problème. Ceci implique que la dynamique (couplée) des particules et du fluide est instantanée. La dynamique de la suspension à l'instant  $t$  est entièrement déterminée par la distribution à cet instant des positions et vitesses des particules, ou de manière équivalente par les positions des particules et le champ de vitesse du fluide au temps  $t$ . Au final, les équations qui décrivent la dynamique de la phase continue sont donc les équations de Stokes stationnaires :

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1.5)$$

et

$$\eta \Delta \mathbf{v} - \nabla P + \mathbf{f} = 0 \quad (1.6)$$

qu'il faut résoudre en tenant compte des conditions aux limites aux surfaces des particules et aux éventuelles parois confinantes.

Contrairement aux équations de Navier-Stokes, les équations de Stokes sont linéaires. Une conséquence mathématique de cette linéarité est que l'on peut appliquer le principe de superposition. La somme de deux solutions des équations de Stokes est également une solution. Il faut toutefois faire attention au fait que la géométrie du problème doit être la même et ne pas oublier de combiner les conditions aux limites.

### 1.2.1.2 Écoulement engendré par une particule en mouvement dans un fluide

Une particule en mouvement de translation et/ou de rotation dans un fluide visqueux exerce des contraintes sur ce dernier et génère un écoulement. Cet écoulement est généralement décrit comme la superposition linéaire d'écoulements générés par des singularités hydrodynamiques (force ponctuelle, source/puits de masse, ...) [1]. Le principe est analogue au développement multipolaire en électrostatique, par exemple lorsque l'on exprime le potentiel électrique produit par une distribution de charge localisée comme la superposition linéaire de potentiels créés par des distributions multipolaires de charges (monopôle, dipôle, ...). Un cas particulièrement simple est celui d'une particule sphérique en translation dans un fluide non borné, puisque dans ce cas le développement contient seulement deux termes. Le premier correspond à l'écoulement engendré par un monopôle de force (Fig. 1.1 a.). Son amplitude décroît en  $1/r$ , où  $r$  est la distance au centre de la particule. Le second terme, lui, décroît en  $1/r^3$  et correspond à l'écoulement généré par un dipôle source-puits

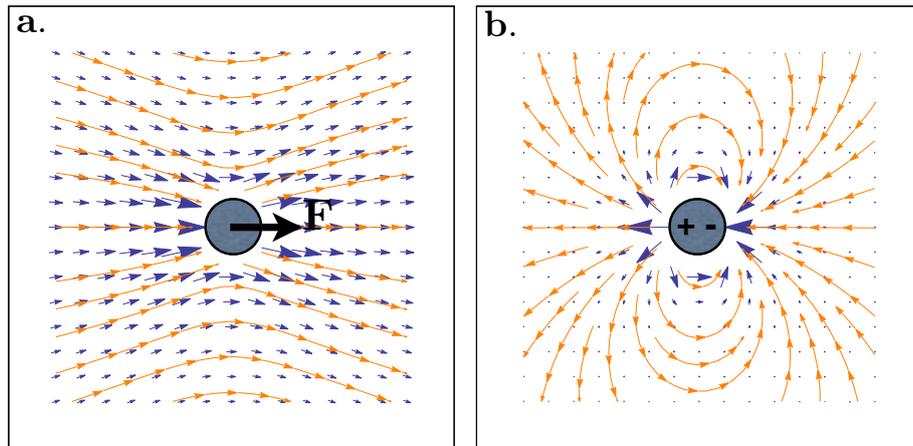


FIGURE 1.1: Écoulements générés par les singularités hydrodynamiques qui interviennent dans le développement de l'écoulement créé par une particule en mouvement de translation dans un fluide non borné. En bleu : champ de vitesse de l'écoulement. En orange : lignes de courant de l'écoulement. Remarque : l'amplitude relative des vecteurs dans les deux images ne tient pas compte de l'importance des deux termes dans le développement. **a.** Écoulement engendré par un monopôle de force  $F\delta(\mathbf{r})$ . **b.** Écoulement engendré par un dipôle source/puits aligné avec la direction de la force.

(Fig.1.1 **b.**). En champ lointain - c'est-à-dire à une distance grande devant la taille de la particule - l'écoulement est largement dominé par la contribution du monopôle de force. Lorsque l'on s'intéresse à la dynamique collective de systèmes relativement dilués, comme c'est le cas dans ce manuscrit, seul le comportement en champ lointain de l'écoulement nous intéresse. Dans ce cas, on peut généralement arrêter le développement au premier terme qui est celui qui domine la dynamique sur des échelles de longueur grandes devant la taille d'une particule.

### 1.2.1.3 Dynamique couplée de particules en interaction hydrodynamique

Si plusieurs particules sont présentes dans le fluide, la dynamique de chacune d'elles va être affectée par les écoulements engendrés par les autres. On dit que les particules sont en interaction hydrodynamique. En théorie, pour trouver le champ de vitesse du fluide, il faut résoudre les équations de Stokes en tenant compte simultanément des conditions aux limites aux surfaces de toutes les particules. S'il existe des méthodes pour le cas de deux particules (par exemple la méthode des images comme en électrostatique), le cas à  $N$  particules avec  $N > 2$  n'admet pas d'expression analytique simple. En pratique, on approxime souvent le champ de vitesse créé par l'ensemble des particules par la somme des champs de vitesse créés par chacune indépendamment. Cette approximation est d'autant meilleure que le système est dilué.

La vitesse d'une particule isotrope  $i$ , de position  $\mathbf{r}_i(t)$ , qui est advectée par les champs de vitesse induits par les autres particules de la suspension, s'écrit :

$$\dot{\mathbf{r}}_i = \mathbf{V}_0 + \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}(\mathbf{r}_i | \mathbf{r}_j, \dot{\mathbf{r}}_j) \quad (1.7)$$

où  $\mathbf{V}_0$  est la vitesse qu'aurait la particule si elle était isolée (non nulle si une force ou un écoulement sont imposés de l'extérieur),  $\mathbf{v}(\mathbf{r}_i | \mathbf{r}_j, \dot{\mathbf{r}}_j)$  est le champ de vitesse induit en  $\mathbf{r}_i$  par une particule de vitesse  $\dot{\mathbf{r}}_j$  située en  $\mathbf{r}_j$ , et  $\mu$  est un coefficient de mobilité qui prend en compte un éventuel frottement avec des parois confinantes. Remarquons que si les particules sont anisotropes, il faut également tenir compte de l'évolution de leur orientation sous l'effet du couple visqueux exercé par le fluide, ainsi que de l'éventuelle anisotropie du coefficient de mobilité (pour plus de détails, voir le chapitre 4). Dans ce cas, le fluide couple les dynamiques translationnelles et orientationnelles de toutes les particules.

Notons enfin que si les équations de Stokes qui régissent la dynamique de la phase continue sont linéaires, la dynamique couplée entre les particules et le fluide, elle, est non-linéaire. A un temps donné, le champ de vitesse de l'écoulement est complètement déterminé par la donnée des positions et des vitesses des particules. Mais, dans le même temps, le fluide advecte les particules et modifie la configuration de la suspension. Ce couplage entre l'écoulement et la configuration de la suspension donne lieu à une dynamique non-linéaire.

#### 1.2.1.4 Un exemple canonique : la sédimentation de particules sphériques

La sédimentation de particules sphériques dans un fluide non borné est un exemple classique de système à N-corps en interaction hydrodynamique. Les particules, plus denses que le fluide, subissent la force de gravité et se déplacent à une vitesse non-nulle par rapport au fluide. Chaque particule modifie le champ de vitesse du fluide et influe sur la dynamique des autres particules. Ce couplage induit une dynamique chaotique [2, 3], où les positions et vitesses des particules fluctuent sans cesse malgré l'absence d'agitation thermique.

Une particule qui sédimente peut être vue, en première approximation, comme une source ponctuelle de force pour le liquide. L'écoulement généré par une telle force correspond à la fonction de Green de l'équation de Stokes Eq. 1.6. Dans un fluide non borné, cet écoulement décroît en  $1/r$  et les interactions entre les particules sont donc à longue portée. Les lignes de courant de l'écoulement engendré par une source de force ponctuelle - qu'on appelle aussi un *Stokeslet* - sont représentées sur la figure Fig. 1.1 a. Pour prendre en compte la taille finie des particules, qui modifient la distribution de masse du fluide, l'écoulement du Stokeslet est complété par l'écoulement engendré par un dipôle source/puits, voir Fig. 1.1 b. Toutefois, la contribution du *dipôle de source* décroît en  $1/r^3$  (à 3D) et peut être négligée en première approximation. Les simulations numériques qui ne gardent que la contribution dominante du Stokeslet reproduisent de manière au moins qualitative la dynamique

grande échelle de la suspension [4].

Malgré l'apparente simplicité des équations, le problème de la sédimentation de particules sphériques dans un fluide 3D n'est toujours pas pleinement compris [3]. Le couplage entre la structure spatiale de la suspension et la distribution des vitesses des particules génère une dynamique complexe que la théorie peine parfois à expliquer. Une question toujours ouverte concerne la longueur de corrélation des fluctuations de vitesse des particules (Fig. 1.2). Les expériences semblent montrer que la longueur de corrélation sature à environ 20 fois la distance moyenne inter-particules pour les grands conteneurs [5, 6]. Le mécanisme qui fixe cette longueur de corrélation des fluctuations de vitesse fait encore aujourd'hui l'objet de nombreuses discussions. La difficulté des calculs vient en partie du fait que les interactions entre les particules sont à longue portée (décroissance en  $1/r$ ) et qu'elles conduisent à la divergence de certaines intégrales quand on somme sur les contributions de toutes les particules. Si le problème a été résolu par Batchelor pour le calcul de la vitesse moyenne de sédimentation [8], le cas des fluctuations de vitesse reste aujourd'hui sujet à débat.

Il convient maintenant de remarquer que la situation est un peu plus simple dans les systèmes confinés quasi-2D. Comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, la contribution dominante aux interactions hydrodynamiques décroît dans ce cas en  $1/r^2$ . Si le calcul de valeurs moyennes présente toujours une divergence logarithmique avec la taille du système, les calculs de corrélations, eux, convergent quelle que soit la taille du système. Dans toute la première partie du manuscrit qui s'intéresse aux suspensions de particules pas-

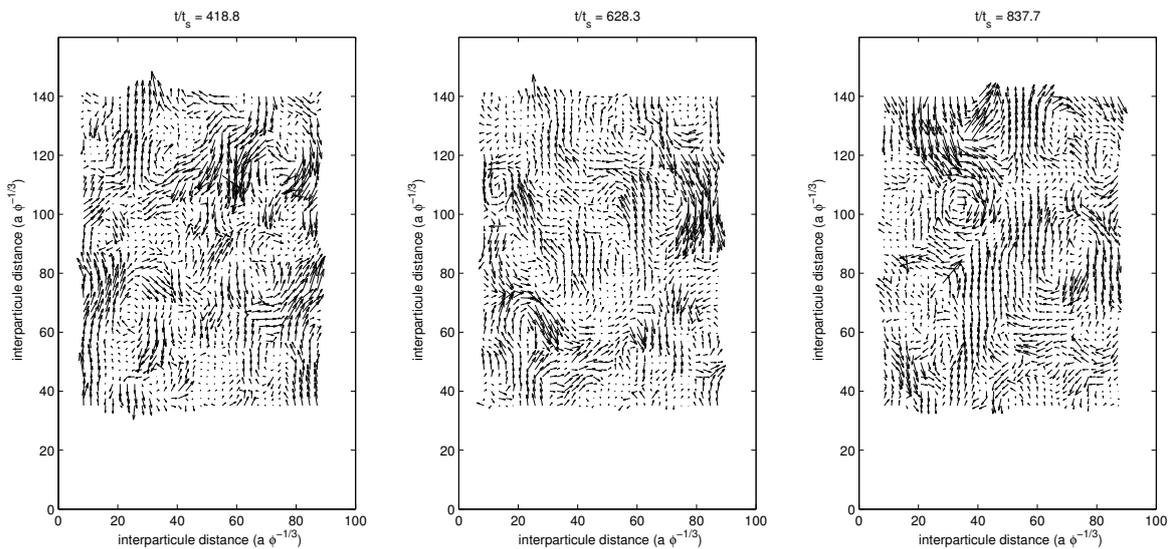


FIGURE 1.2: Figure tirée de [7]. Champs de vitesse à trois instants différents d'une suspension en sédimentation. Ces champs de vitesse sont obtenus par vélocimétrie par images de particules.

sives, on étudie principalement des systèmes confinés où la dynamique des particules est quasi-2D et où les interactions décroissent en  $1/r^2$ . Ce choix est fait non pas pour faciliter les calculs mais parce que ces systèmes présentent une dynamique collective complexe différente du cas 3D (en partie parce que la symétrie des interactions n'est pas la même). Ce choix est de plus justifié par le nombre très important de processus naturels, industriels et technologiques qui impliquent le transport de particules dans des films fluides confinés. Citons par exemple les procédés de filtration [9], de dépôt de particules colloïdales sur une surface solide [10, 11], ou encore le transport de globules dans les vaisseaux sanguins [12]. L'avènement des techniques microfluidiques ces dix dernières années a également ouvert de nombreuses perspectives tant pour l'industrie que pour la recherche [13, 14]. Dans nombre de ces dispositifs microfluidiques, on utilise le transport de particules dont la taille est comparable à la hauteur du système. Comme nous le verrons plus loin, la microfluidique offre également un cadre idéal pour réaliser des expériences modèles, où les paramètres sont bien contrôlés et où l'on peut identifier quels mécanismes engendrent quels phénomènes.

### 1.2.1.5 Influence du confinement sur les interactions hydrodynamiques

La symétrie et la portée des interactions hydrodynamiques dépendent du degré de confinement de la suspension [15]. L'amplitude des interactions, elle, dépend toujours de la vitesse relative des particules par rapport au fluide.

Dans le cas de particules sphériques qui sédimentent dans un fluide 3D non borné, c'est la contribution du monopôle de force, avec sa décroissance en  $1/r$ , qui domine la dynamique grande échelle. Cette lente décroissance des interactions dans le cas 3D est une conséquence de la conservation de l'impulsion du liquide. La situation dans les systèmes quasi-2D est différente. Considérons le cas où la suspension est confinée entre deux plaques parallèles séparées par une distance de l'ordre de la taille des particules. Ces dernières sont contraintes de se déplacer dans le plan défini par les parois et leur dynamique est 2D. La question qui nous intéresse maintenant, du point de vue des interactions hydrodynamiques, est : quelle est, en champ lointain, la forme de l'écoulement engendré par une particule en translation dans le fluide ? Une différence majeure avec le cas 3D est qu'à cause de la friction du liquide avec les parois, l'impulsion du liquide n'est plus conservée. Pour tenir compte des nouvelles conditions aux limites imposées par les parois et trouver l'écoulement engendré par une particule dans cette géométrie, on peut utiliser la méthode des images, comme en électrostatique [16]. Un calcul fastidieux montre que l'écoulement engendré dans la direction transverse aux parois est écranté exponentiellement sur une distance de l'ordre de la séparation entre les plaques. L'écoulement dans le plan parallèle aux parois, lui, prend la forme en champ lointain de l'écoulement engendré par un dipôle source-puits. La direction du dipôle est fixée par la direction de translation de la particule (Fig. 1.3). Le champ de vitesse de l'écoulement dipolaire décroît en  $1/r^2$ . Les interactions hydrodynamiques en géométrie quasi-2D sont donc aussi à longue portée. Notons que la symétrie du champ

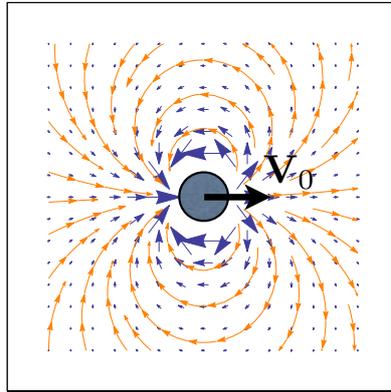


FIGURE 1.3: Écoulement dipolaire généré par une particule en translation à la vitesse  $V_0$  dans un fluide confiné entre deux plaques parallèles. En bleu : champ de vitesse de l'écoulement. En orange : lignes de courant de l'écoulement.

de vitesse dipolaire (Fig. 1.3) est nettement différente de celle du champ de vitesse induit par un Stokeslet dans un fluide non borné (Fig. 1.1 a.). Ces éléments laissent présager une dynamique complexe et originale dans les suspensions confinées.

### 1.2.2 Ondes et fluctuations de densité dans les suspensions passives confinées

Dans la première partie du manuscrit, on s'intéresse principalement à la dynamique de suspensions confinées dans des dispositifs de type Hele-Shaw. On appelle *cellule de Hele-Shaw* un circuit microfluidique constitué de deux plaques parallèles séparées par une distance  $h$  très faible devant les dimensions des plaques (Fig. 1.4). Dans cette géométrie, les particules de la phase dispersée ont une taille typique de l'ordre de la hauteur du canal. La dynamique des particules est bidimensionnelle et les interactions hydrodynamiques sont dominées, en champ lointain, par la contribution du dipôle source-puits (Fig. 1.3). L'écou-

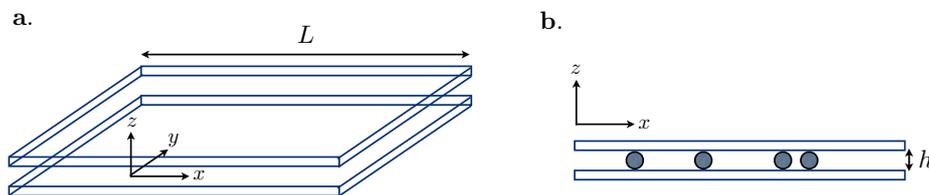


FIGURE 1.4: Schémas d'une cellule microfluidique de type Hele-Shaw. **a.** Une cellule de Hele-Shaw est un dispositif microfluidique constitué de deux plaques parallèles séparées par une distance  $h$  très faible devant la dimension typique  $L$  des plaques dans le plan  $(x,y)$ . **b.** Dans une cellule de Hele-Shaw, les particules de la phase dispersée ont une taille typique comparable à la hauteur du canal.

lement induit par le dipôle en géométrie quasi-2D décroît en  $1/r^2$  et les interactions sont donc à longue portée. Les suspensions sont forcées hors-équilibre soit par l'imposition d'un écoulement de type bouchon, soit par l'application d'une force extérieure uniforme sur les particules.

Plusieurs études expérimentales, théoriques et numériques ont mis en évidence la dynamique collective complexe de ces systèmes à N-corps en interaction. Je résume ici brièvement les travaux antérieurs ou contemporains à ceux présentés dans les chapitres 3 et 4 du manuscrit.

### 1.2.2.1 Ondes de densité linéaires et non-linéaires dans les cristaux hydrodynamiques en géométrie confinée

Une première classe d'études concerne des suspensions ordonnées spatialement. De telles suspensions - où les particules occupent les noeuds d'un réseau et interagissent entre elles via le fluide - sont aussi appelées cristaux hydrodynamiques. Plusieurs techniques microfluidiques et optiques récentes permettent de produire ce type de suspensions [17, 18, 19]. L'intérêt de telles suspensions réside notamment dans leur usage pour des applications de type *laboratoire sur puce* (transport contrôlé de particules fonctionnelles, parallélisation de réactions, ...). Une question naturelle lorsque l'on étudie des cristaux est : sont-ils stables devant des perturbations de la position des particules autour des noeuds du réseau ? Si oui, on peut alors se demander comment se propagent et/ou s'amortissent ces perturbations ? Si non, quels sont les modes de déstabilisation ?

**Cristaux 1D** Une expérience pionnière a été menée en 2006 par l'équipe de Roy Bar-Ziv [20]. Ils ont étudié l'écoulement d'une chaîne ordonnée 1D de gouttes dans une cellule de Hele-Shaw. Le forçage hors-équilibre est assuré par l'écoulement qui alimente la *jonction en T* qui sert à produire les gouttes (Fig. 1.5). Les gouttes ont un diamètre supérieur à la hauteur du canal et elles sont comprimées entre les parois supérieure et inférieure du canal. A cause de la friction avec les parois, les gouttes ont une vitesse inférieure au fluide et elles

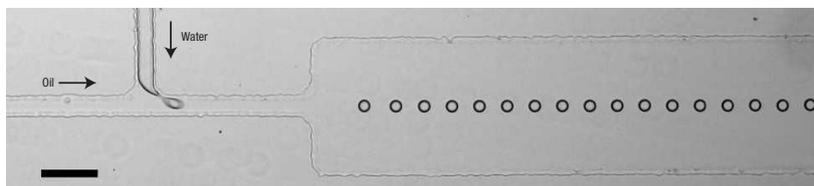


FIGURE 1.5: Dispositif microfluidique utilisé par Beatus et al. [20] pour produire et étudier des cristaux 1D de gouttes d'eau dans de l'huile. La hauteur du canal est  $h = 10 \mu\text{m}$ . Les gouttes ont un diamètre de  $20 \mu\text{m}$  et sont écrasées entre les parois supérieure et inférieure du canal. Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

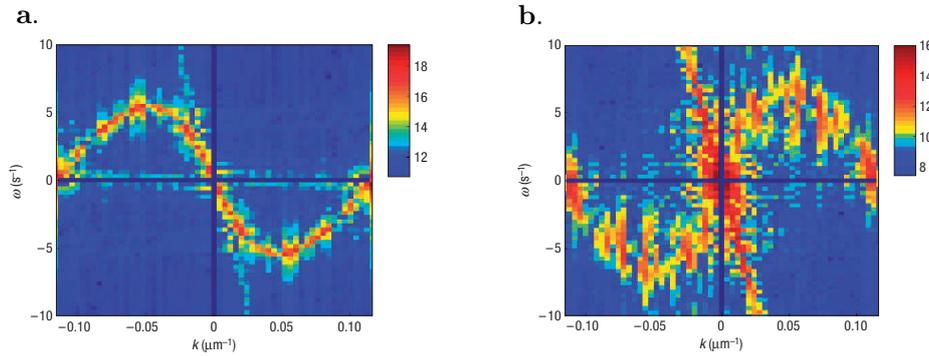


FIGURE 1.6: Graphiques extraits de [20]. Graphiques de l'intensité du logarithme du spectre de puissance des fluctuations de densité longitudinales (a.) et transverses (b.) en fonction du nombre d'onde et de la pulsation ( $k, \omega$ ).

perturbent l'écoulement. Les gouttes du cristal interagissent entre elles via le couplage dipolaire induit par leur vitesse relative par rapport au fluide. Dans leur étude, R. Bar-Ziv et ses collaborateurs mesurent le spectre de puissance des fluctuations de densité longitudinales et transverses (Fig. 1.6). Puisque ces spectres sont à valeurs réelles et que leurs maximums sont très piqués dans l'espace de Fourier, cela implique que les fluctuations de densité se propagent de manière non-amortie le long de la chaîne. Ils utilisent le terme de phonons en référence aux ondes de densité dans les cristaux de la matière condensée. Ce résultat est plutôt contre-intuitif puisque la dynamique de la chaîne de gouttes est dissipative et que les gouttes n'interagissent pas entre elles via des interactions potentielles. Néanmoins, R. Bar-Ziv et ses collaborateurs montrent que l'apport d'énergie fournie par l'écoulement imposé et le couplage dipolaire ainsi induit entre les gouttes permettent d'expliquer la propagation non-amortie d'ondes de densité le long de la chaîne. Leur calcul, qui prend en compte le couplage dipolaire à longue portée entre les particules, montre que le cristal est marginalement stable à l'ordre linéaire. Néanmoins, ils observent expérimentalement que certaines perturbations de large amplitude conduisent à la destruction de l'ordre cristallin (Fig. 1.7). Cela est dû à la non-linéarité de la dynamique couplée des gouttes.

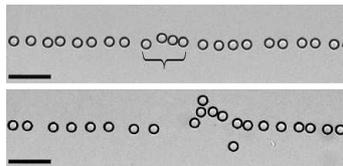


FIGURE 1.7: Images extraites de [20]. Deux images successives d'une fluctuation de densité instable qui conduit à la destruction de l'ordre cristallin. Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

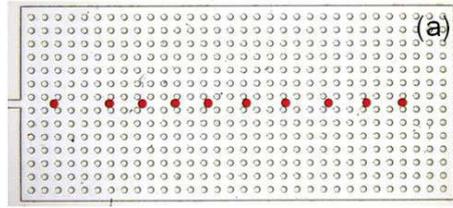


FIGURE 1.8: Image extraite de [22]. Dispositif microfluidique pour l'étude de la stabilité d'une chaîne 1D de gouttes. Le réseau fluïdique est composé de  $14 \times 33$  obstacles cylindriques, disposés sur une maille carrée. Le pas du réseau est de  $300 \mu\text{m}$ . La taille des obstacles est de  $150 \mu\text{m}$  et la hauteur du canal est de  $80 \mu\text{m}$ . Le canal est constitué d'une seule entrée et d'une seule sortie ce qui crée un chemin préférentiel pour les trajectoires des particules. Les gouttes ont un diamètre de  $180 \mu\text{m}$  et sont écrasées entre les parois supérieure et inférieure du dispositif.

Nicolas Champagne, dans son travail de thèse encadré par Denis Bartolo, a également étudié la stabilité de cristaux hydrodynamiques 1D [21]. Pour ce faire, il utilise un dispositif un peu différent, où les gouttes se déplacent le long d'un canal défini par un réseau d'obstacles régulièrement espacés (Fig. 1.8). Les équations qui régissent la dynamique ont cependant la même forme que celles obtenues pour des canaux quasi-2D sans obstacles. Les travaux de N. Champagne et de ses collaborateurs montrent tout d'abord que l'état cristal 1D est stationnaire à condition que le courant en particules,  $j$ , soit inférieure à une valeur critique  $j^*$ . Lorsque la densité linéique en particules augmente, la vitesse des particules diminue à cause du couplage hydrodynamique dipolaire. Au delà du courant critique  $j^*$ , une particule n'a pas le temps, entre deux injections, de parcourir une distance égale à son diamètre. Il se forme alors un bouchon et les collisions qui en résultent génèrent l'invasion du réseau (Fig. 1.9). Les travaux de l'équipe de Roy Bar-Ziv ont permis de montrer que, en dessous de  $j^*$ , les cristaux hydrodynamiques 1D sont marginalement stables à l'ordre linéaire. Nicolas Champagne et ses collaborateurs vont plus loin et montrent que des perturbations longitudinales d'amplitudes finies se propagent sous forme d'ondes de choc (Fig. 1.10) [23]. Cette dynamique *à la Burgers* résulte de la non-linéarité des interactions hydrodynamiques entre les particules.

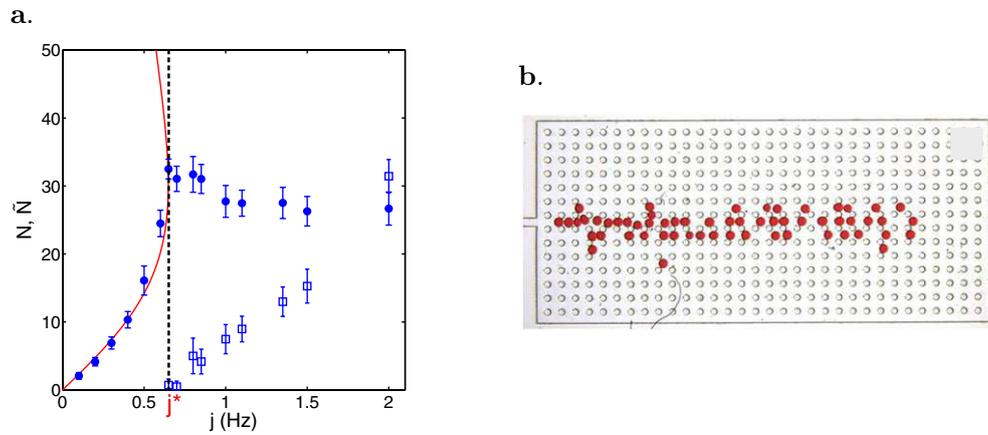


FIGURE 1.9: Images extraites de [22]. **a.** Nombre de gouttes dans l'allée centrale  $N$  ( $\bullet$ ) et dans les autres allées  $\tilde{N}$  ( $\square$ ) en fonction du courant en particules. En rouge : prédiction théorique de la variation de  $N$  basée sur une modélisation du couplage hydrodynamique dipolaire entre les gouttes. La ligne verticale en pointillés indique la position du courant critique  $j^*$  au delà duquel le réseau est envahi. **b.** Invasion du réseau pour un courant  $j > j^*$ .

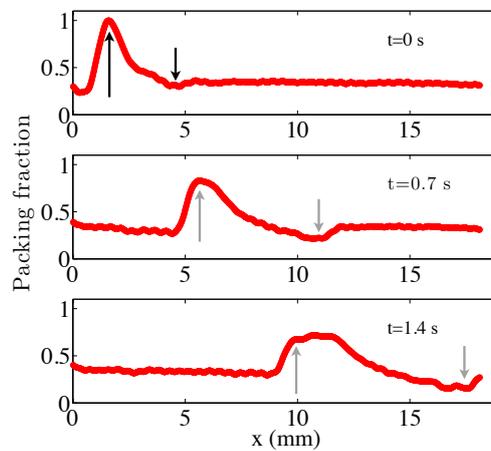


FIGURE 1.10: Image extraite de [23]. Evolution dans le temps du profil de densité le long de l'allée centrale. Un bouchon est généré au temps  $t = 0$ . Les flèches indiquent les positions du maximum et du minimum de la perturbation. Le pic de densité initial se déforme de manière asymétrique. Le front gauche reste abrupt alors que le front droit s'étend. Cette évolution est typique d'une dynamique de type onde de choc à la Burgers .

**Cristaux 2D** Peu de travaux étudient la dynamique de suspensions 2D ordonnées. Au niveau théorique, on peut citer l'étude de J. Crowley en 1976 qui porte sur la stabilité de cristaux 2D horizontaux qui sédimentent dans un fluide 3D non borné [24]. Les calculs de J. Crowley montrent que ces cristaux sont linéairement instables et que les particules tendent à former des clusters denses qui détruisent l'ordre cristallin. Notons que dans cette étude, les cristaux sont 2D mais les particules sont en mouvement dans un fluide non borné. Les interactions hydrodynamiques sont donc dominées par la contribution du Stokeslet (Fig. 1.1 a.) et n'ont pas la même symétrie que dans le cas confiné qui nous intéresse ici. Le résultat de J. Crowley ne présage donc en rien de la stabilité de cristaux hydrodynamiques 2D en géométrie confinée, où les interactions sont dominées, en champ lointain, par la contribution du dipôle source/puits. Plus récemment, R. Lahiri et S. Ramaswamy utilisent un modèle continu où les interactions hydrodynamiques interviennent via la dépendance locale du coefficient de mobilité des particules avec la déformation de la structure cristalline [25]. Ce modèle prédit que les cristaux hydrodynamiques 2D, confinés et forcés hors-équilibre, sont linéairement instables. Du côté des simulations numériques, les travaux de R.H.Goodman et ses collaborateurs semblent montrer que les interactions hydrodynamiques conduisent à la propagation d'ondes de densité dans les cristaux 2D mais que certains modes sont instables et conduisent à la destruction de l'ordre cristallin (Fig. 1.11) [26]. Dans le chapitre 4 de ce manuscrit, je présente un modèle théorique microscopique pour l'étude de la stabilité de cristaux hydrodynamiques confinés. Ce modèle prédit la stabilité linéaire des cristaux hydrodynamiques confinés. On montre également que des ondes de densité se propagent de manière non-amortie dans toutes les directions et à toutes les échelles.

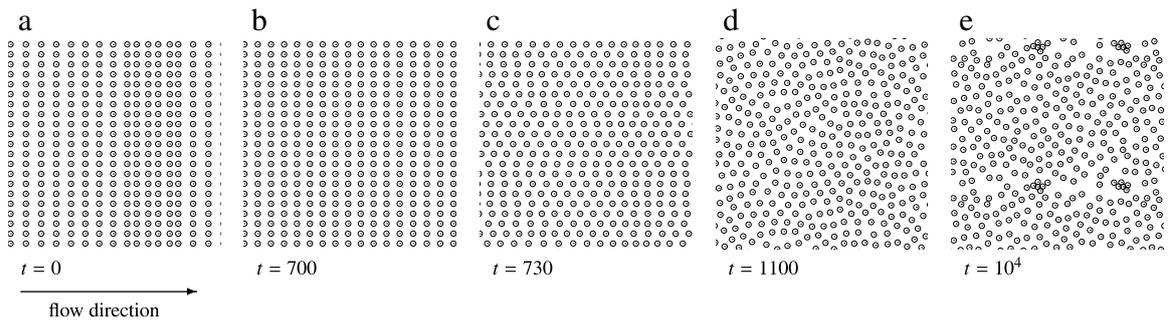


FIGURE 1.11: Images extraites de [26]. Simulation numérique de l'évolution d'un cristal quasi-2D infini dans une cellule de Hele-Shaw. **a.** Configuration initiale avec une onde de densité longitudinale. **b.** L'onde de densité s'est dispersée. **c.** Transition vers un état cristallin de symétrie hexagonale. **d.** et **e.** Des clusters de particules se forment et détruisent l'ordre cristallin.

**Cristallites 2D** Des travaux numériques de l'équipe de J. Blawdziewicz à Yale portent sur la dynamique de cristallites composés d'un millier de particules dans des canaux de type Hele-Shaw [27]. Ces cristallites sont soumis à un écoulement uniforme qui met en mouvement les particules. Du fait des interactions hydrodynamiques entre les particules, dominées en champ lointain par le terme de dipôle source-puits, les cristallites subissent des déformations macroscopiques asymétriques (Fig. 1.12).

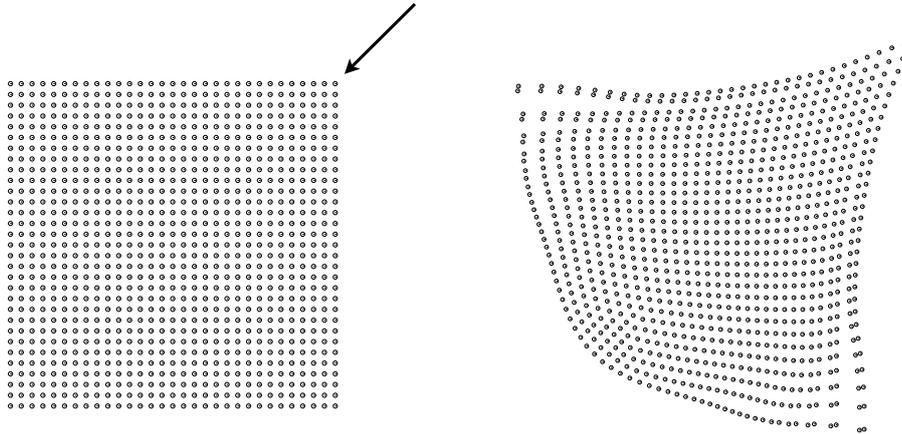


FIGURE 1.12: Images extraites de [27]. Simulation numérique de l'écoulement d'un cristallite carré composé d'environ 1000 particules. Les particules sont confinées dans un canal de type Hele-Shaw. La flèche noire indique la direction de l'écoulement. A gauche, le cristallite au temps  $t = 0$ . A droite, le cristallite après 525 pas de temps.

Des expériences que j'ai réalisées sur de petits cristallites de particules polymères advectés en géométrie confinée sont présentées à la fin du chapitre 4 de ce manuscrit. Ces expériences montrent un bon accord qualitatif avec les travaux de M. Baron et ses collaborateurs.

### 1.2.2.2 Ondes de densité linéaires et non-linéaires dans les suspensions désordonnées en géométrie confinée

La plupart des études sur la dynamique de suspensions en géométrie confinée concernent des suspensions désordonnées. Ce genre de suspensions est bien plus facile à obtenir expérimentalement et ce sont elles que l'on retrouve dans la plupart des processus naturels (sédimentation, transport dans les vaisseaux sanguins, ...) et procédés industriels (filtration, dépôt de colloïdes, ...). Dans une étude pionnière publiée en 2000 [28], F. Rouyer et al. s'intéressent à la structure et à la dynamique d'une suspension dans un lit quasi-2D fluidisé. Leur système consiste en une cellule de Hele-Shaw placée verticalement, dans laquelle un écoulement de type bouchon du bas vers le haut permet de compenser la vitesse moyenne de sédimentation des particules. A cause des interactions hydrodynamiques, les positions

et vitesses des particules fluctuent sans cesse dans le plan défini par les parois de la cellule. F. Rouyer et ses collaborateurs étudient dans un premier temps la structure moyenne de la suspension. Pour cela, ils mesurent la fonction de distribution de paire  $g(r)$  de la suspension (Fig. 1.13). Cette mesure leur permet de montrer que si la suspension est bien homogène, sa structure n'est pas complètement aléatoire. Le premier pic en  $r = a$ , où  $a$  est le rayon d'une particule, est caractéristique des interactions stériques entre des particules indéformables. Le second pic en  $r = 2a$ , lui, indique que les particules ressentent une attraction à courte portée qui tend à favoriser la formation de petits agrégats (doublets, triplets, ...). Pour des distances supérieures au diamètre d'une particule, les positions des particules ne sont plus corrélées. F. Rouyer et al. s'intéressent également aux fluctuations de vitesse dans la suspension. Ils montrent que les fluctuations de vitesse et les fluctuations de densité dans un sous-volume de la suspension sont reliées par un équilibre entre la flottabilité du sous-volume et la friction exercée par les parois sur les particules du sous-volume. Ces résultats nous renseignent sur la structure moyenne de la suspension mais ne nous permettent pas de comprendre en détail la dynamique complexe dont elle résulte. Des expériences réalisées par l'équipe de R. Bar-Ziv en 2009 permettent d'en savoir un peu plus [29]. Dans ce travail, ils s'intéressent à la dynamique d'une émulsion désordonnée advectée dans un canal de type Hele-Shaw (Fig. 1.14). Ils montrent que la densité moyennée sur la largeur du canal obéit à une équation non-linéaire de Burgers. Cette équation, qui découle du couplage entre la vitesse locale et la densité locale moyennée sur la largeur du canal, donne lieu à

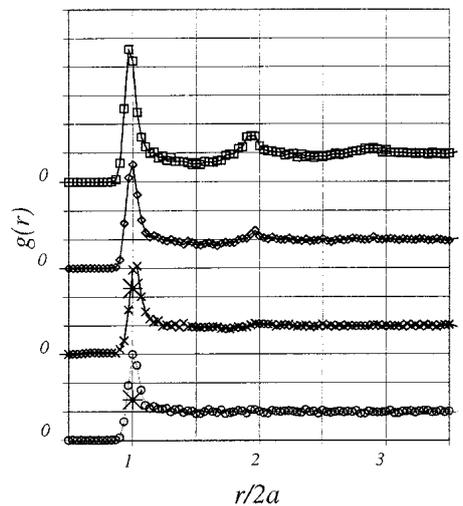


FIGURE 1.13: Figure tirée de [28]. Fonction de distribution de paire radiale  $g(r)$  en fonction de la distance  $r$  entre les centres de particules renormalisée par le diamètre  $2a$  des particules. Les différentes courbes correspondent à différentes fractions surfaciques en particules :  $C = 21\%$ ( $\circ$ ),  $28\%$ ( $\times$ ),  $46\%$ ( $\diamond$ ),  $70\%$ ( $\square$ ). Les courbes sont décalées verticalement pour une meilleure lisibilité.

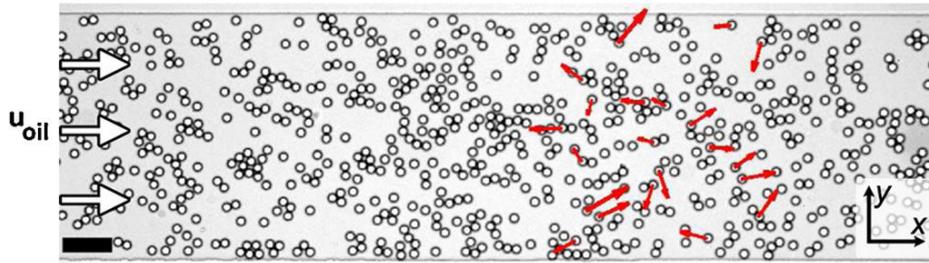


FIGURE 1.14: Image tirée de [29]. Assemblée désordonnée de gouttes d'eau confinées dans un canal quasi-2D. Les gouttes sont advectées par un écoulement d'huile dont la direction est indiquée par les flèches blanches. Les flèches rouges indiquent l'écart de vitesse instantané de certaines gouttes par rapport à la vitesse moyenne des gouttes. Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

la propagation d'ondes de choc dans la direction de l'écoulement (Fig. 1.15). Pour les perturbations de faibles amplitudes, l'équation de Burgers se linéarise et décrit la propagation non dispersive d'ondes de compression au sein de l'émulsion. Encore une fois, un modèle basé sur le couplage hydrodynamique dipolaire entre les particules permet d'expliquer la phénoménologie observée. Le travail présenté dans le chapitre 3 de ce manuscrit généralise l'étude présentée ci-dessus en s'intéressant à la dynamique bidimensionnelle complète

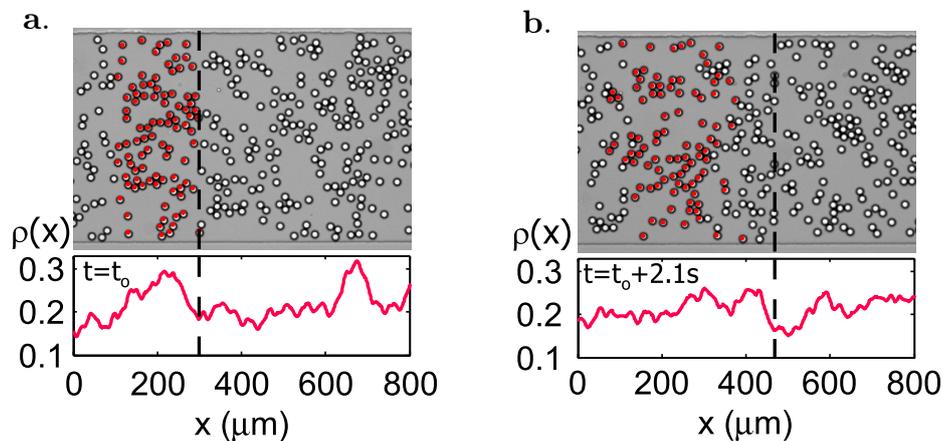


FIGURE 1.15: Figures tirées de [29]. Propagation d'une onde de choc dans une suspension 2D advectée. **a.** Le front de l'onde de choc est marqué par une ligne pointillée. Les particules à la gauche du front sont colorées en rouge. Sous l'image est tracé le profil instantané de la densité moyennée sur la largeur du canal. **b.** 2.1 s plus tard, le front de l'onde de choc s'est déplacé. La vitesse de propagation du front est supérieure à la vitesse des particules de la perturbation puisque de nouvelles particules à droite des précédentes forment le nouveau front.

d'une émulsion advectée en géométrie de type Hele-Shaw. On verra que des ondes de densité se propagent de manière non-amortie à toutes les échelles et dans toutes les directions. Dans un article récent, R. Bar-Ziv et ses collaborateurs se sont également intéressés aux corrélations de vitesse des gouttes au sein de l'émulsion [30]. Ils ont montré expérimentalement que les corrélations de vitesse sont à longue portée, puisqu'elles décroissent en  $1/r^2$ , et que la symétrie et l'amplitude de ces corrélations s'expliquent par le couplage hydrodynamique dipolaire entre les gouttes.

### 1.3 Ondes et fluctuations de densité dans les liquides actifs polaires

Dans la seconde partie du manuscrit, on s'intéresse à la dynamique collective d'assemblées de particules auto-propulsées en interaction. L'intérêt pour ce type de systèmes provient, en grande partie, de l'observation dans la nature de groupes d'animaux, d'insectes, ou de micro-organismes, qui se déplacent de façon cohérente à l'échelle du groupe (Fig. 1.16) [31, 32]. Ces divers systèmes ont *a priori* peu de choses en commun. L'échelle de taille des individus concernés va du mètre au micromètre. Les capacités de "communication" entre les individus sont évidemment bien différentes selon que l'on considère des oiseaux ou des bactéries. Malgré tout, ces systèmes présentent des comportements collectifs émergents similaires. Des groupes compacts se forment dans lesquels l'ensemble des individus se déplacent en moyenne dans la même direction. On peut alors se demander s'il existe des principes généraux - comme ceux de la physique statistique pour les transitions

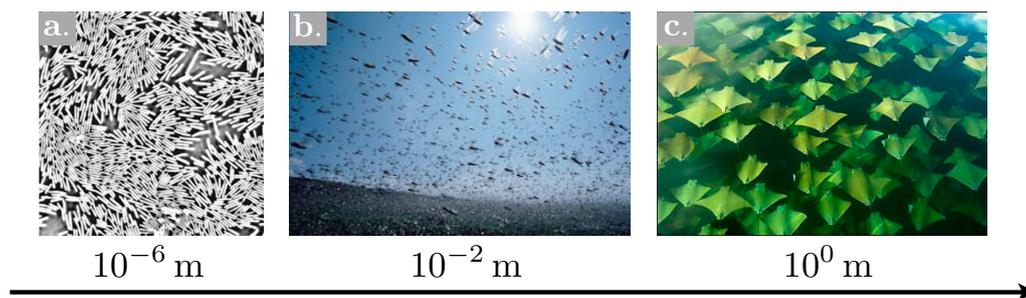


FIGURE 1.16: Illustration de la diversité des systèmes naturels où des populations d'individus adoptent un mouvement collectif. L'échelle de longueur en dessous des images montre que l'on rencontre ce type de dynamique dans des systèmes de tailles très différentes. **a.** Colonie de *bacillus subtilis* (bactéries). On observe des paquets de bactéries alignées nageant dans la même direction. Image tirée de [33]. **b.** Nuée de criquets se déplaçant dans une seule direction. Photographie : Mitsuhiko Imamori/Minden. **c.** Banc de raies dorées nageant dans une direction. Photographie : Sandra Critelli.

de phase vers des états ordonnés dans les systèmes à l'équilibre - qui gouvernent le comportement à grande échelle des systèmes de particules actives. La notion de *matière active* est large et regroupe des systèmes où les interactions entre les individus ont des symétries différentes. Dans la suite, on se restreint au cas où les particules interagissent entre elles via des interactions d'alignement polaires (Fig. 1.17). Cette catégorie a fait l'objet de nombreux travaux théoriques et numériques du fait de sa pertinence pour la description des systèmes naturels macroscopiques. Par contre, elle exclut la majorité des systèmes expérimentaux mis au point en laboratoire pour étudier de manière contrôlée la matière active. Le système que nous avons mis au point dans l'équipe, qui fait l'objet de la seconde partie de ce manuscrit, est le premier système expérimental où les interactions d'alignement polaires entre les particules sont bien maîtrisées.

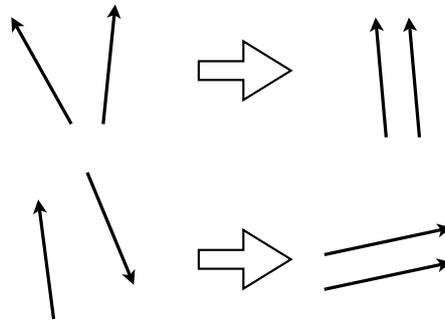


FIGURE 1.17: Dans le cas des interactions d'alignement polaires, les particules ont tendance à aligner leur direction de nage quelle que soit leur orientation relative.

### 1.3.1 Approches numériques et théoriques

Pour identifier les mécanismes minimaux nécessaires à l'émergence de mouvements coordonnés dans les systèmes de particules auto-propulsées, de nombreux modèles numériques et théoriques ont été mis au point depuis une vingtaine d'années [32]. Ces modèles s'inspirent largement de la physique des transitions de phase des systèmes à l'équilibre, l'émergence d'un mouvement dirigé étant vue comme une brisure spontanée de la symétrie de rotation du système.

#### 1.3.1.1 Le modèle de Vicsek

Dans ce cadre, le travail numérique de Vicsek et al. publié en 1995 [34] tient une place un peu similaire au modèle des spins d'Ising pour le cas de la transition paramagnétique/ferromagnétique. Le modèle de Vicsek est un modèle numérique microscopique qui a été introduit pour expliquer l'émergence de mouvement dirigé par une brisure spontanée de la symétrie de rotation du système due à une règle d'interaction simple. Ce mo-

dèle considère des particules auto-propulsées ponctuelles, dont la norme de la vitesse est constante. A chaque pas de temps, la seule interaction subie par une particule consiste en un alignement de sa vitesse avec la vitesse moyenne des particules voisines au temps précédent. Cet alignement est perturbé par un bruit qui modélise la diffusion orientationnelle propre à tout système expérimental. Dans le modèle original, les particules évoluent dans un espace carré à deux dimensions, de côté  $L$ , avec des conditions aux bords périodiques. On note  $N$  le nombre total de particules. Les deux paramètres de contrôle sont la densité  $\rho = N/L^2$  et l'intensité du bruit  $\eta$ . A un temps  $t$ , l'état d'une particule  $i$  est défini par sa position  $\mathbf{r}_i(t)$  et sa vitesse  $\mathbf{v}_i(t)$ . La norme de la vitesse étant fixée, il suffit de considérer son orientation  $\theta_i$  définie par :

$$\mathbf{v}_i(t) = v_0(\cos \theta_i(t)\hat{\mathbf{x}} + \sin \theta_i(t)\hat{\mathbf{y}}) \quad (1.8)$$

A chaque pas de temps, on met à jour les valeurs de position et d'orientation de toutes les particules :

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t + \Delta t)\Delta t \quad (1.9)$$

$$\theta_i(t + \Delta t) = \arg \left( \sum_{j \in D_i} \mathbf{v}_j(t) \right) + \eta \zeta_i(t) \quad (1.10)$$

$D_i$  est un disque de rayon  $R$  centré sur la particule  $i$  et qui définit la portée des interactions.  $\zeta_i$  est une variable aléatoire uniforme.

Le modèle de Vicsek met en évidence une transition entre deux phases homogènes, une phase désordonnée à basse densité ou à bruit important, et une phase complètement ordonnée à haute densité ou à bas bruit. Quand la densité  $\rho$  est faible ou que le bruit  $\eta$  est important, les particules ne parviennent pas à s'aligner et forment une phase de type gaz (Fig. 1.18 a.). Lorsque l'on diminue le bruit ou que l'on augmente la densité, les particules tendent à s'aligner et un ordre orientationnel apparaît (Fig. 1.18 c.). Pour le quantifier, on introduit le paramètre d'ordre  $\Pi$ , qui correspond à la polarisation globale du système :

$$\Pi(t) = \frac{1}{Nv_0} \left| \sum_{i=1}^N \mathbf{v}_i(t) \right| \quad (1.11)$$

Ce paramètre d'ordre quantifie la transition du système d'un état isotrope où  $\Pi = 0$  vers des états polarisés où toutes les particules se déplacent dans la même direction. Le système est entièrement polarisé pour  $\Pi = 1$ . L'augmentation de l'efficacité de l'alignement quand on augmente la densité ou que l'on diminue le bruit conduit à une brisure spontanée de la symétrie de rotation et donc à l'émergence d'une direction privilégiée. L'ordre de la transition de l'état homogène désordonné vers l'état homogène polaire a longtemps été sujet à débat. Les premières observations de Vicsek et al. faisaient état d'une transition continue [34]. Des travaux ultérieurs ont permis de montrer que la continuité apparente de

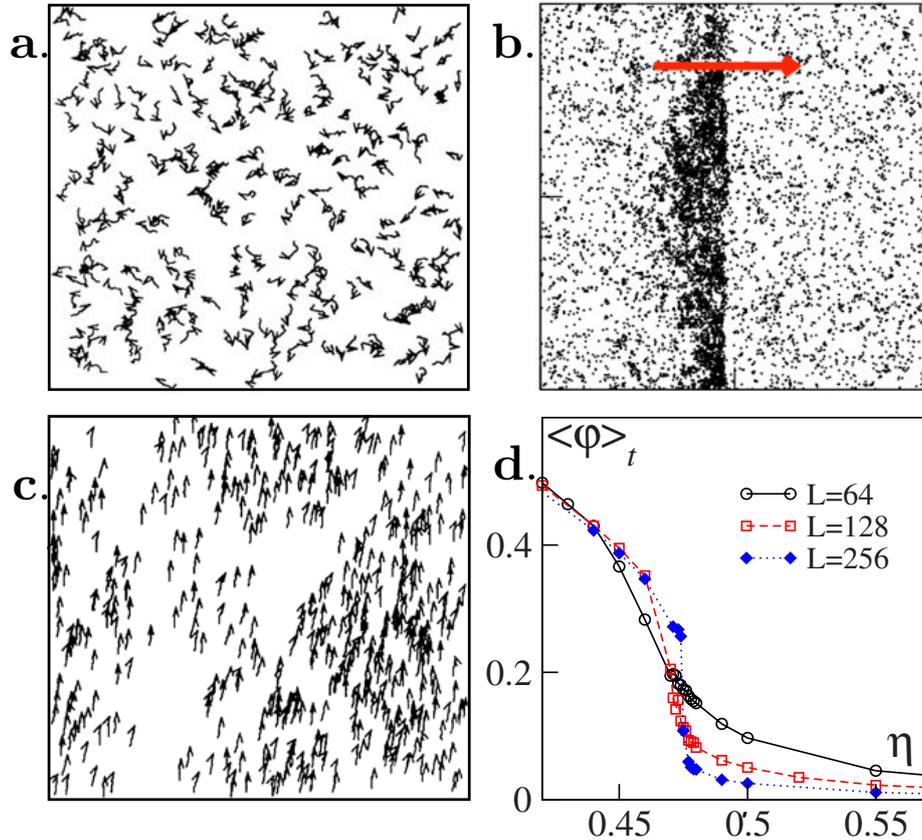


FIGURE 1.18: Illustration de la transition de phase en bruit dans le modèle de Vicsek. **a.** Image d'une simulation du modèle de Vicsek à grand bruit. Le système est homogène et désordonné. Les particules effectuent des marches aléatoires persistantes. **b.** Image d'une simulation du modèle de Vicsek à bruit intermédiaire (au niveau de la transition vers le mouvement collectif). Le système est partiellement polarisé et fortement inhomogène. Une partie des particules forment une bande asymétrique qui se propage de manière cohérente au sein d'une phase désordonnée. **c.** Image d'une simulation du modèle de Vicsek à faible bruit. Toutes les particules se déplacent dans la même direction et le système est donc fortement polarisé. Cet état ordonné est homogène mais donne lieu à des fluctuations géantes de densité. **d.** Courbes du paramètre d'ordre de polarisation en fonction de l'amplitude du bruit  $\eta$  pour différentes tailles de systèmes. A grand bruit, le système est désordonné et la polarisation vaut  $\sim 0$ . Lorsque l'on diminue le bruit, les particules s'alignent et la polarisation augmente. Le caractère discontinu de la transition apparaît pour les systèmes assez grands. Images **a.** et **c.** adaptées de [34]. Images **b.** et **d.** adaptées de [35].

la transition est en fait un artefact lié à la taille finie des simulations. La transition de l'état homogène désordonné vers l'état homogène ordonné est en fait une transition de phase du premier ordre [36, 37]. A la transition, le système donne lieu à une séparation de phase. Une partie des particules se regroupent dans des amas polaires qui forment des *bandes* se déplaçant au sein d'une phase gaz isotrope (Fig. 1.18 c.). Quand on augmente la densité ou quand on diminue l'amplitude du bruit, les bandes s'étalent et le système s'auto-organise en un *liquide polaire* homogène où l'ensemble des particules se déplacent en moyenne le long de la même direction.

### 1.3.1.2 Le modèle continu de Toner et Tu

Toujours en 1995, J. Toner et Y. Tu proposent une description théorique continue de la transition de phase mise en évidence dans le modèle de Vicsek [38]. Ils considèrent également des particules auto-propulsées de vitesse constante et qui interagissent via des interactions d'alignements polaires. En se basant uniquement sur des considérations de symétrie, ils établissent les équations hydrodynamiques les plus générales possibles pour le champ de densité et le champ de polarisation de la suspension. Ces équations font intervenir des coefficients phénoménologiques qui ne peuvent pas être déterminés sans spécifier le détail des interactions au niveau microscopique. Récemment, plusieurs équipes ont retrouvé des équations similaires à celles proposées par Toner et Tu en passant à la limite continue des modèles microscopiques où les interactions entre les particules sont spécifiées [39, 40]. A l'origine, le modèle développé par Toner et Tu a été introduit pour décrire la transition de phase apparemment continue mise en évidence par les simulations numériques de Vicsek et al. Comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, des travaux numériques ultérieurs ont mis en évidence le caractère discontinu de la transition. Aujourd'hui, il est clair que la transition vers le mouvement collectif est bien discontinue. Cela se manifeste par l'émergence d'excitations non-linéaires de type bandes qui nucléent sous le seuil de transition de la théorie linéaire de Toner et Tu. En particulier, Caussin et al. ont montré qu'il existe des excitations non-linéaires de densité qui reproduisent toutes les observations numériques en procédant à une résolution de l'équation non-linéaire de Toner et Tu pour des excitations invariantes par translation dans la direction transverse à leur vitesse de propagation [41]. L'étude numérique extensive de Frey et al. [37], qui étudient un modèle proche de celui de Vicsek, met également clairement en évidence la possibilité de coexistence entre plusieurs phases de la matière active polaire, ce qui confirme un scénario du type transition du premier ordre. Pour revenir au modèle de Toner et Tu linéaire, une analyse de stabilité de la phase ordonnée loin de la transition montre que les fluctuations de densité se propagent dans la phase ordonnée de manière non-dispersive [42]. Notons aussi que dans le modèle de Toner et Tu et dans les modèles microscopiques correspondants (notamment le modèle de Vicsek), les fluctuations de densité dans la phase ordonnée sont "géantes". On dit que les fluctuations de densité sont "géantes" lorsque la variance du nombre de particules dans

une boîte fictive est proportionnelle au nombre de particules moyen dans la boîte avec un exposant supérieur à 1 :

$$\Delta N^2 \propto N^\alpha \quad \text{avec } \alpha > 1 \quad (1.12)$$

Les fluctuations sont alors plus importantes que dans un fluide à l'équilibre thermodynamique où l'exposant vaut 1. La description hydrodynamique de Toner et Tu prédit des fluctuations géantes de densité dans la phase liquide polaire avec un exposant  $\alpha = 2$  [38].

### 1.3.2 Systèmes expérimentaux

Si de nombreux travaux numériques et théoriques portent sur la matière active polaire, très peu de systèmes expérimentaux contrôlés permettent une comparaison quantitative ou au moins qualitative avec les modèles. A ma connaissance, seuls deux systèmes expérimentaux, hors celui présenté dans la seconde partie de ce manuscrit, permettent d'étudier de très larges assemblées d'individus auto-propulsés en interaction d'alignement polaire.

**Filaments d'actine propulsés par des moteurs moléculaires fixes** Le premier système a été mis au point dans le groupe de A.R. Bausch à Munich [43]. Les particules sont des filaments d'actine (une protéine) propulsés à vitesse constante par des moteurs moléculaires fixés à une paroi solide (Fig. 1.19 a.). Les filaments interagissent entre eux via la répul-

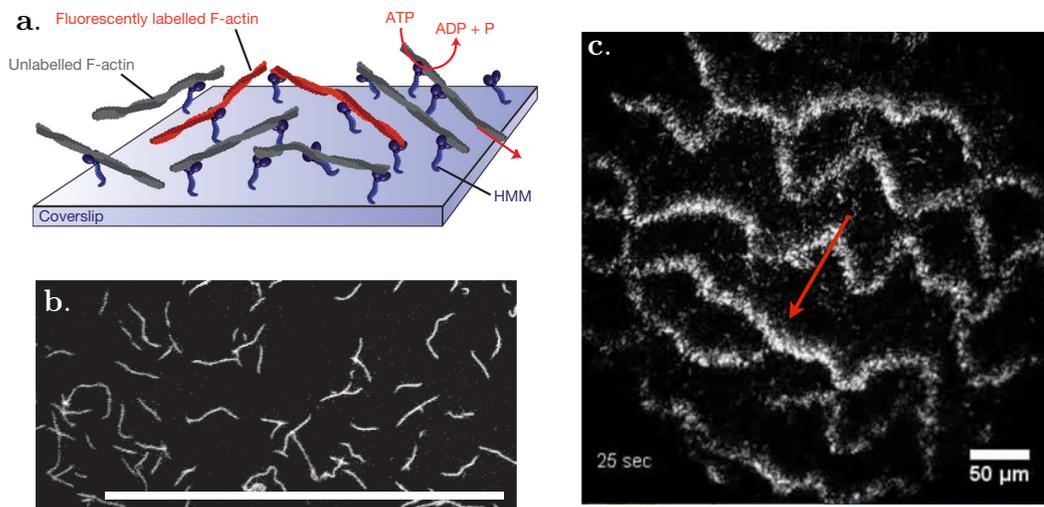


FIGURE 1.19: Filaments d'actine propulsés par des moteurs moléculaires fixes. **a.** Schéma du dispositif. Des moteurs moléculaires sont fixés à une lamelle et propulsent les filaments d'actine. Une petite fraction des filaments est rendue fluorescente pour la visualisation. **b.** Image d'une phase désordonnée à basse densité en filaments. Le système est homogène et isotrope. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$ . **c.** A haute densité en filaments, des bandes se forment et se propagent de façon cohérente. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$ . Images tirées de [43].

sion stérique et une faible interaction d'alignement polaire. Notons que la symétrie de ces interactions n'est établie qu'*a posteriori* suite à l'observation expérimentale des motifs formés par les assemblées de filaments. Lorsque la densité surfacique en actine est faible, les filaments se déplacent dans des directions aléatoires et forment une phase désordonnée (Fig. 1.19 b.). Quand on augmente la densité en actine, la phase désordonnée devient instable et des paquets de filaments se déplaçant dans la même direction se forment. Pour des densités encore plus élevées, une partie des filaments forment des bandes denses qui se propagent de manière cohérente (Fig. 1.19 c.). Les filaments en dehors des bandes, eux, ont un mouvement aléatoire. Cette observation rappelle bien sûr les bandes obtenues dans les simulations numériques du modèle de Vicsek au niveau de la transition vers l'état ordonné. Néanmoins, le profil de densité de ces bandes formées par les filaments d'actine est symétrique alors que celui des bandes observées dans les simulations numériques du modèle de Vicsek, lui, est nettement asymétrique. Par ailleurs, même pour de très hautes densités surfaciques en filaments, on n'observe jamais d'état homogène ordonné (liquide polaire). Ainsi, si ce système permet d'observer une transition d'un état désordonné vers un état partiellement ordonné où des groupes de particules s'ordonnent de manière polaire, il ne constitue pas réellement un système modèle pour l'étude de la matière active polaire. Dans ces expériences, les paramètres de contrôle sont nombreux et les interactions sont trop compliquées pour être comprises en détail. L'origine de l'alignement polaire des filaments n'est pas expliquée et encore moins sa dépendance vis-à-vis des différents paramètres de contrôle de l'expérience.

**Grains vibrés asymétriques** Un autre type de système a permis de visualiser une transition d'un état désordonné vers un état partiellement ordonné polaire. Dans ce système, les particules sont des grains asymétriques macroscopiques posés à la surface d'une plaque maintenue en vibration uniforme (Fig. 1.20) [44]. Les grains sont mis en mouvement du fait de l'asymétrie de leur coefficient de friction. Ici, le paramètre de contrôle qui pilote la transition est l'amplitude de vibration,  $\Gamma$ , de la plaque. Lorsque cette amplitude diminue, la longueur de persistance du mouvement des grains augmente (ce qui revient à diminuer le bruit orientationnel dans les modèles de type Vicsek). Lorsque l'amplitude de la vibration est élevée, les grains se déplacent dans des directions aléatoires et forment une phase désordonnée. En diminuant l'amplitude de vibration, on observe une transition vers le mouvement collectif puisque de grands paquets de grains (de tailles comparables à la taille du système) se mettent à se déplacer de manière cohérente (Fig. 1.20 e.). Un point fort de ce système est la possibilité d'effectuer des analyses de données quantitatives qui permettent de mettre en évidence la présence d'une transition entre une phase isotrope homogène et une phase polarisée (Fig. 1.20 f.). J. Deseigne et al. montrent d'ailleurs que la phase polarisée présente des fluctuations géantes de densités similaires à celles rencontrées dans le modèle de Vicsek (Fig. 1.20 g.). Ceci dit, les interactions de coeur dur entre les grains

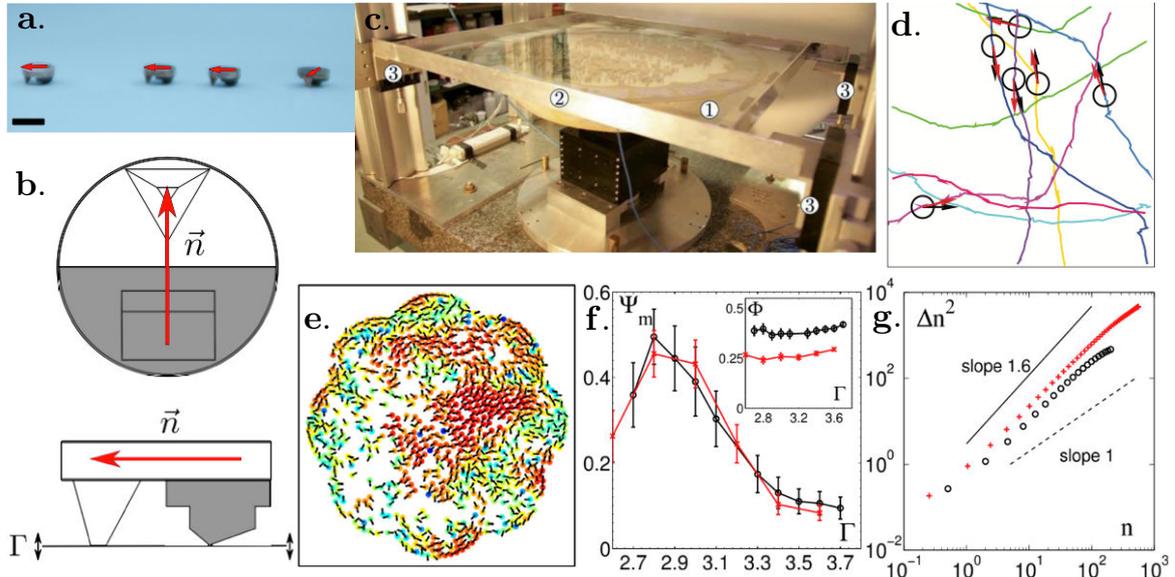


FIGURE 1.20: Expérience avec des grains polaires vibrés. **a.** Vue de côté des grains asymétriques. Les flèches rouges indiquent la direction du mouvement engendré par les vibrations de la plaque. **b.** Schéma vu de dessous et de côté d'un grain asymétrique. **c.** Photographie de la table vibrante sur laquelle sont placés les grains. **d.** Trajectoires de grains en régime dilué. La longueur de persistance est grande devant le diamètre des grains. **e.** Visualisation instantanée d'une expérience avec une phase dense et une amplitude de vibration faible. Les ronds indiquent la position de grains et les couleurs représentent l'ordre local. Les zones fortement polarisées apparaissent en rouge. **f.** Courbes de la valeur la plus probable de la polarisation moyenne en fonction de l'amplitude de vibration de la plaque. Les deux courbes correspondent à différentes expériences. La densité est la même mais la taille du système est deux fois plus grande pour l'expérience qui correspond à la courbe rouge. **g.** Fluctuations du nombre de particules dans une boîte virtuelle,  $\Delta n^2$ , en fonction du nombre moyen de particules dans la boîte,  $n$ , pour des tailles de boîtes croissantes. Puisque la pente est supérieure à 1, le système donne lieu à des fluctuations géantes de densité. Encore une fois, les points rouges correspondent à une expérience où le système est deux fois plus grand que pour les points noirs. Figure adaptée de [45].

rendent difficile la détermination des règles d'alignement des vitesses lors des chocs. L'origine de l'ordre polaire dans ce système n'est pas pleinement comprise. De plus, ce système est limité à l'étude d'un faible nombre de particules en interaction. En effet, la dimension de la plaque doit rester relativement petite pour pouvoir assurer une vibration uniforme, et les grains, de structure relativement complexe, ne peuvent pas être miniaturisés à l'infini. Au final, vu le faible nombre de particules, il est difficile de savoir si l'état cohérent observé à faible amplitude de vibration correspond à un état homogène de type liquide polaire ou à un état de type bande. Cette expérience bien contrôlée est probablement la plus proche d'un système modèle pour l'étude de la matière active polaire, mais malheureusement la complexité des interactions ainsi que les contraintes sur la taille du système et le nombre de particules font que cette expérience n'est pas pleinement satisfaisante dans ce rôle.

Dans la seconde partie du manuscrit, je présente mes travaux sur un nouveau système expérimental que j'ai aidé à développer au cours de ma thèse. Ce dispositif utilise un mécanisme de propulsion original basé sur un effet d'électrohydrodynamique peu connu, l'électro-rotation de Quincke [46]. Ce système permet d'étudier de manière quantitative la transition vers le mouvement collectif de très larges assemblées de colloïdes auto-propulsés (plusieurs centaines de milliers de colloïdes). En outre, les interactions entre les particules sont connues et on montre qu'elles conduisent effectivement à un alignement polaire des orientations. Comme nous le verrons dans la seconde partie du manuscrit, ce système modèle permet de faire des comparaisons qualitatives et quantitatives avec les modèles développés ces vingt dernières années pour décrire la matière active polaire.

## 1.4 Effet du désordre sur la dynamique des suspensions

Dans les deux premières sections de cette introduction, on a vu que des assemblées de particules passives ou actives en interaction et hors-équilibre donnent lieu à des dynamiques collectives complexes, et notamment à la propagation d'ondes de densité linéaires et/ou non-linéaires. La quasi-totalité des études expérimentales, théoriques, et numériques, réalisées sur ces systèmes considèrent des particules se déplaçant dans des milieux homogènes (fluide, tapis homogène de moteurs moléculaires, plaque vibrante, ...). Pourtant, dans la plupart des systèmes naturels, le mouvement des particules a lieu dans des environnements désordonnés. Citons par exemple le transport de particules dans des milieux poreux (comme le transport de minéraux ou de bactéries dans le sol), le déplacement des bactéries dans le système digestif, ou encore le mouvement de troupeaux dans des environnements boisés.

Dans les systèmes où les particules n'interagissent pas ou seulement faiblement entre elles, la présence de désordre peut générer des effets spectaculaires sur le transport des particules. Par exemple, dans les métaux, la présence d'impuretés distribuées de manière aléatoire et la diffusion multiple des électrons sur celles-ci peut conduire à une interférence des électrons

avec eux-mêmes et à la localisation de leur fonction d'onde [47, 48]. Ce phénomène, appelé *localisation d'Anderson*, est un des phénomènes qui peuvent conduire à une transition métal-isolant dans certains métaux. Notons que la localisation d'Anderson n'est pas un phénomène limité aux fonctions d'onde des électrons mais s'applique à toutes les ondes en général (électromagnétiques [49], atomiques [50, 51], acoustiques [52], ...). D'un point de vue particulière (et non quantique), la présence de désordre peut également conduire à des effets dramatiques sur la dynamique. Ainsi, les interactions avec des obstacles peuvent conduire à un comportement sous-diffusif des particules voire à un piégeage des particules dans des domaines localisés (transition de percolation) [53]. Dans le dernier chapitre de ce manuscrit, on s'intéresse à la dynamique de particules auto-propulsées en interaction polaire dans des chambres microfluidiques remplies d'obstacles fixes placés de manière aléatoire. En particulier, on s'intéresse à l'effet de la présence d'obstacles sur le mouvement collectif des particules. A ma connaissance, les seuls travaux qui existent sur la question sont les études numériques réalisées par l'équipe de Fernando Peruani à Nice [54, 55]. Dans ces travaux, elle réalise des simulations numériques du modèle de Vicsek en présence d'obstacles répulsifs. Dans le régime dilué où les particules interagissent peu entre elles, Peruani et al. montrent que la présence d'obstacles modifie la dynamique individuelle des particules. Lorsque la force répulsive exercée par les obstacles est faible, les particules conservent un comportement diffusif (marche aléatoire persistante) quelle que soit la fraction surfacique en obstacles. Le coefficient de diffusion a un comportement non-monotone et présente un minimum pour des fractions surfaciques en obstacles intermédiaires (Fig. 1.21 a.). Lorsque

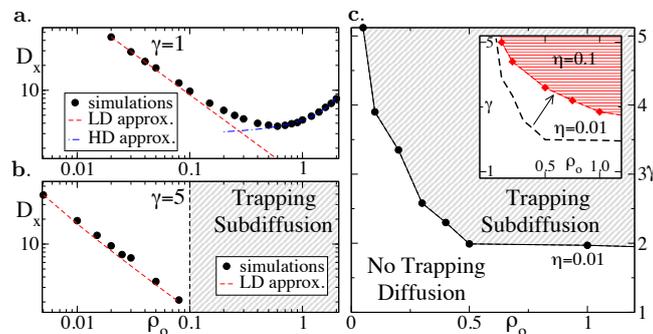


FIGURE 1.21: Comportement diffusif et sous-diffusif de particules auto-propulsées en présence d'obstacles. **a.** Pour une interaction faible avec les obstacles ( $\gamma$  petit dans le modèle), le comportement des particules est diffusif quelle que soit la densité surfacique en obstacles. La courbe montre le coefficient de diffusion dans la direction  $x$  en fonction de la densité surfacique en obstacles  $\rho_0$ . Cette courbe admet un minimum pour une valeur de  $\rho_0$  intermédiaire. **b.** Pour une interaction forte avec les obstacles ( $\gamma$  plus élevé), le comportement est diffusif à faible  $\rho_0$  et sous-diffusif au dessus d'une valeur seuil. **c.** A bruit angulaire fixé, la frontière entre le comportement diffusif et le comportement sous-diffusif dépend des valeurs de  $\rho_0$  et  $\gamma$ . Figure adaptée de [55].

l'interaction avec les obstacles est plus forte, le coefficient de diffusion diminue lorsque l'on augmente la fraction surfacique en obstacles. Au dessus d'une certaine fraction surfacique en obstacles, les particules n'arrivent presque plus à trouver de chemin entre les obstacles et elles se retrouvent temporairement piégées dans des régions localisées de l'espace. Ce phénomène de piégeage conduit à une dynamique sous-diffusive des particules (Fig. 1.21 b.). F. Peruani et al. étudient également l'influence de la présence d'obstacles sur la dynamique collective des particules dans le modèle de Vicsek. En l'absence d'obstacles, la polarisation moyenne des particules (le paramètre d'ordre) est d'autant plus grande que le bruit angulaire sur l'orientation des particules est faible (voir Fig. 1.18 d.). En présence d'obstacles, Peruani et al. montrent que le paramètre d'ordre est maximum pour une valeur non nulle du bruit angulaire. A fort bruit, les particules n'arrivent pas à aligner leur orientation et le mouvement est désordonné comme cela se passe en absence d'obstacles. De manière plus surprenante, à bas bruit, les particules n'arrivent pas non plus à adopter une dynamique collective. Cela s'explique par le fait que, à bas bruit, lorsque qu'un "troupeau" de particules rencontre un obstacle et se scinde en deux, les deux troupes résultants sont très cohérents et se déplacent chacun dans leur direction propre. Le troupeau initial ne se reforme pas derrière l'obstacle. Pour un bruit angulaire intermédiaire, les troupes diffusent après la collision avec l'obstacle et un unique troupeau se reforme. Il existe donc un bruit optimal pour lequel le mouvement collectif est favorisé (Fig. 1.22).

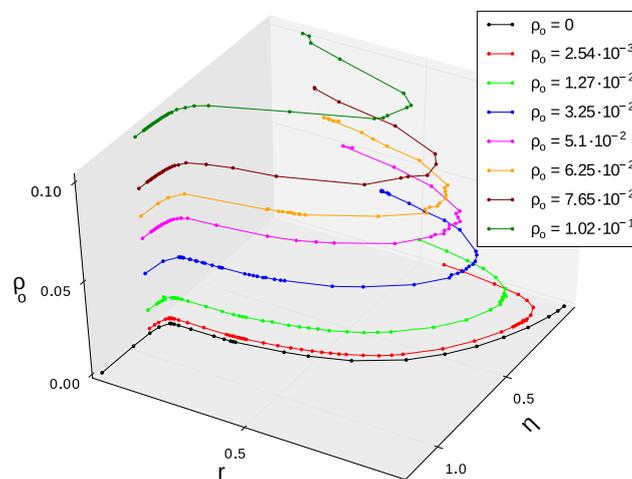


FIGURE 1.22: Paramètre d'ordre  $r$  en fonction du bruit angulaire  $\eta$  et de la densité surfacique en obstacles  $\rho_0$ . La courbe noire ( $\rho_0 = 0$ ) correspond à la transition du modèle de Vicsek sans obstacle. Lorsque la densité en obstacles est non-nulle, il existe un bruit angulaire non-nul pour lequel le mouvement collectif est optimum. Notons aussi qu'à bruit angulaire fixé, le paramètre d'ordre diminue lorsque l'on augmente la densité surfacique en obstacles. Figure tirée de [54].

## 1.5 Présentation du manuscrit

Les chapitres 2 et 3 de ce manuscrit concernent l'étude de la dynamique d'assemblées de particules passives en interaction hydrodynamique. Le chapitre 4 parle à la fois de suspensions de particules passives et de suspensions de particules auto-propulsées. Les chapitres 5, 6, 7 et 8 portent sur la dynamique de suspensions de particules auto-propulsées.

**Chapitre 2 : Montage expérimental pour l'étude d'une assemblée de gouttes en interaction hydrodynamique.** Dans le chapitre 2 de ce manuscrit, je décris le système expérimental que nous avons développé et utilisé pour l'étude de la dynamique d'une émulsion confinée hors-équilibre. Dans une première partie, je présente le dispositif microfluidique ainsi que les outils utilisés pour la production et l'observation d'une large assemblée de gouttes couplées via des interactions hydrodynamiques. Puis, je décris les techniques d'acquisition et d'analyse des données que j'ai développées pour l'étude de la dynamique grande échelle de l'émulsion. Enfin, je présente brièvement un dispositif expérimental que j'ai mis au point au début de ma thèse pour étudier l'écoulement de cristallites constitués de particules polymères de formes arbitraires.

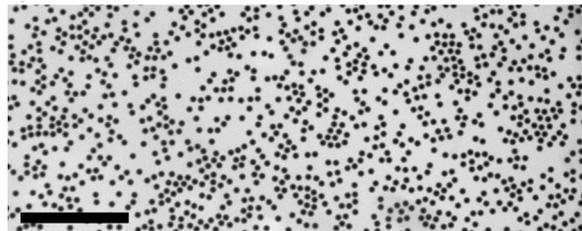


FIGURE 1.23: Image d'une émulsion dans notre dispositif microfluidique. La zone d'observation mesure 2.70 mm de long pour 1.03 mm de large. Barre d'échelle : 500  $\mu\text{m}$ .

**Chapitre 3 : Ondes de densité dans une émulsion bidimensionnelle simplement advectée.** Dans le chapitre 3 je présente nos résultats expérimentaux et théoriques sur la dynamique collective d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée. Dans un premier temps, je détaille la forme des interactions hydrodynamiques dans les géométries confinées de type Hele-Shaw utilisées pour nos expériences. Ensuite, j'introduis notre article "Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids" [56] qui présente de manière exhaustive nos résultats. On montre que des ondes de densité se propagent de manière non-amortie au sein de l'émulsion à toutes les échelles et dans toutes les directions. A l'aide d'un modèle qui prend en compte les interactions hydrodynamiques et stériques entre les particules, on est capable d'expliquer les résultats expérimentaux. Je conclus ce chapitre en

discutant des perspectives de notre travail et, notamment, de son extension pour l'étude du problème de la sédimentation dans des milieux non confinés.

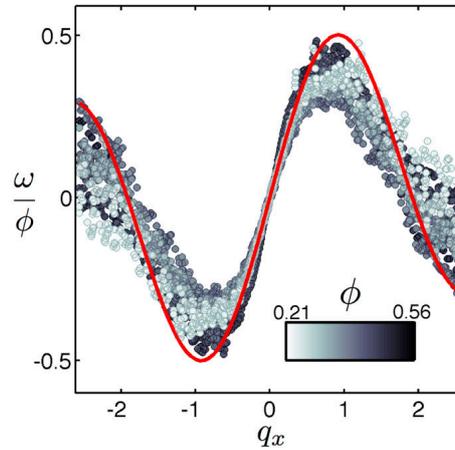


FIGURE 1.24: Relations de dispersion des ondes de densité dans des émulsions advectées en géométrie confinée. Les relations de dispersion de 12 émulsions de fractions surfaciques en gouttes différentes sont superposées. La courbe rouge est la prédiction théorique issue de notre modèle.

**Chapitre 4 : Stabilité de cristaux hydrodynamiques formés de particules passives ou actives.** Dans ce chapitre, on étudie de manière théorique la dynamique de suspensions ordonnées où les particules occupent initialement les noeuds d'un réseau cristallin. En particulier, on s'intéresse à la stabilité structurelle et orientationnelle de ces cristaux. On discute à la fois du cas des cristaux composés de particules passives et du cas des cristaux composés de particules actives. Je commence tout d'abord par introduire le modèle utilisé pour décrire la dynamique des cristaux passifs et actifs. Je reviens notamment en détail sur les interactions hydrodynamiques en séparant le cas des particules passives et celui des particules actives. Ensuite, je présente les principaux résultats sur la stabilité linéaire des cristaux hydrodynamiques. Les limites du modèle sont également discutées. Dans une dernière partie, j'aborde quelques perspectives expérimentales et, notamment, mon travail sur des suspensions ordonnées réalisé à l'aide d'un montage de synthèse de particules *in situ* par lithographie optique.

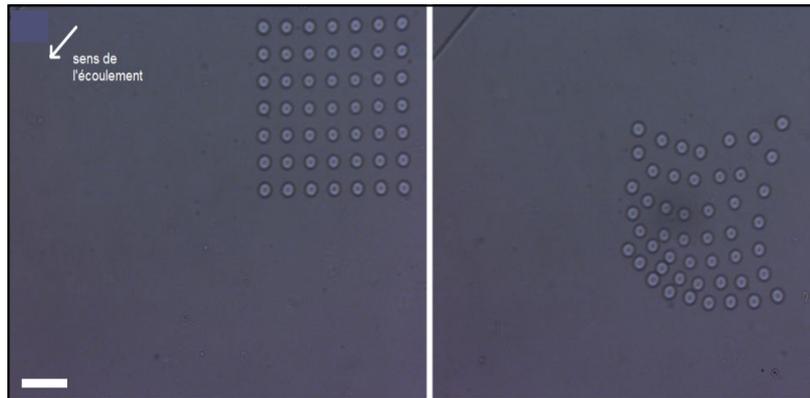


FIGURE 1.25: Ecoulement d'un cristallite 2D de  $7 \times 7$  particules polymères cylindriques de diamètre  $50 \mu\text{m}$ . A partir de  $t = 0$ , on impose un écoulement de vitesse constante et orienté à  $45^\circ$  par rapport à l'axe principal du cristal. A gauche, le cristallite au temps  $t = 0$ . A droite, le cristallite après 48 s d'écoulement. Barre d'échelle :  $200 \mu\text{m}$ .

**Chapitre 5 : Un nouveau mécanisme de propulsion : l'électro-rotation de Quincke.** Dans ce chapitre, je présente le mécanisme de propulsion original mis au point et utilisé dans l'équipe pour étudier des ensembles de particules auto-propulsées en interaction. La propulsion des particules est assurée par un mécanisme d'électro-hydrodynamique peu connu appelé l'électro-rotation de Quincke [46]. Avant de passer à la dynamique collective de larges assemblées de ces particules actives dans les chapitres suivants, je présente ici une caractérisation de la dynamique individuelle de nos particules auto-propulsées.

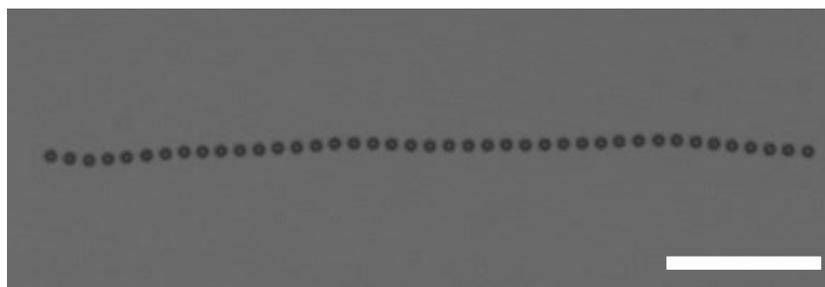


FIGURE 1.26: Trajectoire rectiligne d'une particule propulsée par l'électro-rotation de Quincke. Superposition de 40 images espacées de 10 ms. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$ .

**Chapitre 6 : Systèmes expérimentaux pour l'étude de larges assemblées de rouleurs de Quincke en interaction.** Dans ce chapitre, je présente les systèmes expérimentaux que j'ai mis au point et utilisés pour étudier de larges ensembles de rouleurs de Quincke (particules auto-propulsées par l'électro-rotation de Quincke) en interaction. Je passe en revue le choix

et la préparation de la solution ainsi que des rouleurs. Ensuite, je décris le design de circuits microfluidiques « simples » réalisés à l'aide de ruban adhésif double-face. Je présente aussi le processus de fabrication de circuits par lithographie optique, technique que j'ai dû mettre en place et optimiser pour la réalisation de circuits avec des motifs de tailles inférieures à la centaine de microns. Enfin, je décris les techniques d'imagerie, d'acquisition de données à haut débit, et de traitement de données que j'ai dû concevoir pour exploiter la richesse de nos montages expérimentaux.

**Chapitre 7 : Dynamique collective d'une assemblée de rouleurs colloïdaux.** Dans ce chapitre, je présente le travail que j'ai effectué sur la transition vers le mouvement collectif de larges assemblées de rouleurs de Quincke. Dans un premier temps, j'explique de quelle manière nous confinons le mouvement de nos particules dans des chambres microfluidiques périodiques dans une direction. Ensuite, nous étudions expérimentalement la transition vers le mouvement collectif des assemblées de rouleurs colloïdaux en fonction des différents paramètres de contrôle. Nous verrons que la phénoménologie observée est très proche de celle du modèle de Vicsek. Un des intérêts majeurs de notre système est que les interactions entre les rouleurs sont descriptibles au niveau microscopique. Je présenterai brièvement quelques éléments de théorie qui montrent que des interactions d'alignement polaires sont bien responsables de la transition vers le mouvement collectif dans notre système.

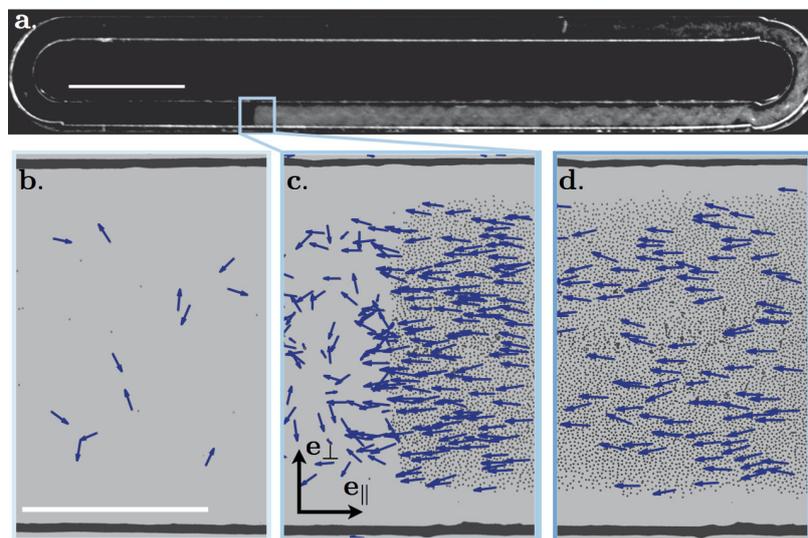


FIGURE 1.27: Illustration des trois phases observées en faisant varier la densité en particules dans le système expérimental présenté au chapitre 7. Les flèches bleues indiquent les vitesses instantanées de quelques particules. **b.** Etat gaz isotrope. Barre d'échelle :  $500 \mu\text{m}$ . **a.** et **c.** Etat bande. Barre d'échelle de la figure **a.** :  $5 \text{ mm}$ . **d.** Etat polaire homogène.

**Chapitre 8 : Dynamique de rouleurs colloïdaux en milieu hétérogène.** Dans ce chapitre, je commence par présenter brièvement la manière dont on introduit de façon contrôlée des obstacles dans nos chambres microfluidiques. Ensuite, je caractérise expérimentalement l'interaction particule/obstacle. Dans un second temps, je m'intéresse à l'influence du désordre spatial sur la dynamique collective des rouleurs. Pour cela, je me place à une fraction surfacique en rouleurs où en l'absence d'obstacle une partie importante des particules forme une bande propagative. J'étudie alors comment se comporte le système au fur et à mesure que l'on augmente la fraction surfacique en obstacles. On verra qu'au dessus d'une certaine fraction surfacique en obstacles, le mouvement collectif des rouleurs est inhibé. Cette transition vers le désordre est caractérisée finement en étudiant le système aux échelles macroscopique et microscopique. De cette manière, on identifie les mécanismes responsables de la disparition de la dynamique collective en présence d'un fort désordre.

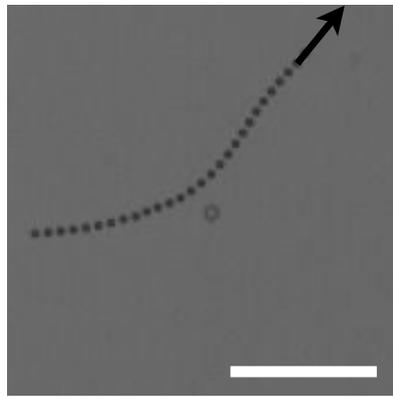


FIGURE 1.28: Diffusion d'un rouleur sur un obstacle fixe de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$ . Superposition de 30 images successives espacées de 10 ms. La flèche noire indique la direction de la vitesse instantanée du rouleur. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$



## Montage expérimental pour l'étude d'une assemblée de gouttes en interaction hydrodynamique

Dans ce chapitre, je décris le système expérimental que nous avons développé et utilisé pour l'étude de la dynamique d'une émulsion confinée hors-équilibre. A l'aide d'outils microfluidiques, nous avons mis au point une expérience bien contrôlée qui permet l'étude d'une large assemblée de gouttes couplées via des interactions hydrodynamiques. Dans le chapitre suivant, je montrerai que cette expérience modèle produit des résultats dont la portée s'étend en fait à une classe relativement large de systèmes.

Dans une première partie, je décris le dispositif microfluidique ainsi que les outils utilisés pour la production et l'observation d'une large assemblée de gouttes couplées via des interactions hydrodynamiques. Ce dispositif a été mis au point et optimisé par Raphaël Jeanneret, également doctorant avec Denis Bartolo, dans le but principal de réaliser une expérience d'écho [57]. Avec Raphaël, j'ai utilisé le dispositif sur une courte période de temps pour réaliser les expériences présentées dans le chapitre suivant. Dans une seconde partie, je décris les techniques d'acquisition et d'analyse des données que j'ai développées pour l'étude de la dynamique grande échelle de l'émulsion. Enfin, je présente brièvement un dispositif expérimental que j'ai mis au point au début de ma thèse pour étudier l'écoulement de structures ordonnées constituées de particules de formes arbitraires en interaction hydrodynamique.

## 2.1 Dispositif et outils microfluidiques

Notre but est l'étude de la dynamique collective de particules en écoulement dans des milieux confinés. Pour plusieurs raisons, nous avons fait le choix d'utiliser comme particules des gouttes fabriquées in-situ dans des dispositifs microfluidiques. Les techniques de création de gouttes micrométriques sont aujourd'hui bien maîtrisées. Elles permettent de produire des émulsions complètement monodisperses et de maîtriser leurs densités. De plus, il est facile d'ajuster la taille des gouttes pour modifier l'importance du confinement. Dans un registre plus pragmatique, l'utilisation de gouttes dans des géométries confinées permet de réduire l'impact des défauts présents dans le dispositif puisque les gouttes peuvent se déformer légèrement et ne sont donc pas bloquées par les aspérités du circuit.

### 2.1.1 Production de l'émulsion

L'émulsion de gouttes micrométriques est produite in-situ dans un dispositif de type "Flow-Focusing" (FF). Le principe est simple puisqu'il consiste à venir cisailier le fluide qui constitue la phase dispersée (les gouttes) par le fluide de la phase continue au niveau d'une jonction (Fig. 2.1). En pratique, la taille des gouttes et la fréquence d'émission dépendent de manière complexe de nombreux paramètres géométriques et physiques :  $w/h$ ,  $w/l$ ,  $h/l$ ,  $\eta_w/\eta_0$ ,  $Q_w/Q_0$ ,  $\gamma$ , ... où  $w$ ,  $h$  et  $l$  sont les trois dimensions des canaux,  $\eta_w$  et  $\eta_0$  les viscosités des fluides utilisés,  $Q_w$  et  $Q_0$  les débits imposés et  $\gamma$  la tension interfaciale entre les deux fluides. Ceci dit, pour une géométrie fixée et un choix de fluides pour les deux phases, la

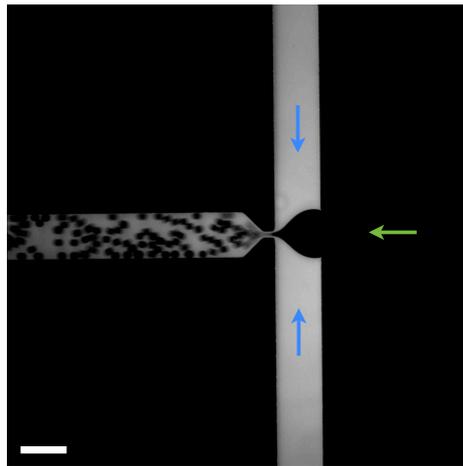


FIGURE 2.1: Image par microscopie de la jonction du Flow-Focusing. Les flèches bleues indiquent les arrivées de la phase continue. La flèche verte indique l'arrivée de la phase dispersée. Barre d'échelle : 200  $\mu\text{m}$ .

taille des gouttes et la fréquence d'émission ne dépendent plus que des débits imposés. La difficulté principale réside alors dans le fait que la taille des gouttes et la fréquence d'émission ne varient pas de manière indépendante. Faire varier la densité de l'émulsion sans modifier la taille des gouttes demande alors une astuce supplémentaire. Si la fréquence d'émission des gouttes est assez importante, une solution possible est de diluer l'émulsion de manière contrôlée en aval de la jonction. Pour cela, on place une jonction supplémentaire après celle qui permet de produire les gouttes. En injectant le fluide de la phase continue au niveau de cette jonction, on introduit du volume de liquide supplémentaire entre les gouttes ce qui revient à diluer l'émulsion. La figure Fig. 2.2 montre notre générateur de gouttes. Le rectangle en pointillés rouges entoure le FF. Les canaux extérieurs au rectangle rouge forment le dilueur. Des filtres sont placés au niveau des entrées des fluides pour éviter que des impuretés viennent obstruer les jonctions. Le débit imposé dans le dilueur ne doit pas être trop important sinon il risque de perturber la production des gouttes en amont au niveau de la constriction. Pour des débits dans le dilueur jusqu'à  $30 \mu\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ , la taille des gouttes reste constante. Cela permet de faire varier la fraction surfacique occupée par l'émulsion dans notre dispositif d'environ 50% à environ 10% sans modifier la taille des gouttes ni induire de polydispersité.

Les particules sont des gouttes d'hexadécane (Sigma-Aldrich) dans de l'eau déionisée. Un surfactant, du SDS (Sodium Dodecyl Sulfate, concentration massique  $c_w = 0.1\%$ ) est ajouté à l'eau pour stabiliser les gouttes et éviter qu'elles coalescent. De la fluorescéine est également ajoutée à la phase aqueuse pour améliorer le contraste des images.

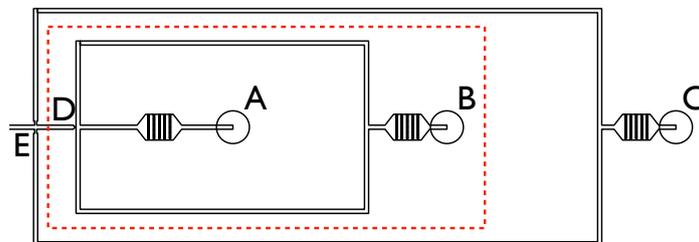


FIGURE 2.2: Schéma du générateur de gouttes. Le rectangle en pointillés rouges entoure le dispositif de Flow-Focusing. Les canaux à l'extérieur constituent le dilueur. La phase dispersée est injectée par l'entrée A. La phase continue est injectée par les entrées B et C. Les gouttes sont produites au niveau de la constriction D (la figure Fig. 2.1 est une photo de cette constriction) et la dilution s'effectue au niveau de la jonction E. Les canaux ont une largeur de  $200 \mu\text{m}$  pour une hauteur de  $11 \mu\text{m}$ . La constriction a une largeur de  $30 \mu\text{m}$ .

### 2.1.2 Chambre de visualisation

Le dispositif de Flow-Focusing présenté ci-dessus permet de produire une émulsion monodisperse de fraction surfacique contrôlée en quelques secondes. On souhaite main-

tenant injecter cette émulsion dans une large chambre de visualisation tout en conservant une fraction surfacique homogène. Il faut noter que la taille des gouttes est fixée par les paramètres géométriques et physiques du FF. Pour notre étude sur la dynamique collective d'une émulsion bidimensionnelle en écoulement, on souhaite que le mouvement des gouttes soit confiné à deux dimensions et que l'amplitude des interactions hydrodynamiques entre les gouttes soit assez importante. Ces deux critères nous poussent à injecter l'émulsion dans une chambre d'observation dont la hauteur est légèrement inférieure au diamètre des gouttes. Ainsi les gouttes sont aplaties entre les parois, ce qui confine effectivement leur mouvement à deux dimensions et qui assure que les gouttes perturbent bien l'écoulement, ce qui va générer les interactions hydrodynamiques.

Après un long travail de prototypage, Raphaël a opté pour l'achat de circuits en verre (Micronit Microfluidics, the Netherlands). Ces dispositifs sont obtenus par gravure chimique du verre. Leur coût de production est élevé mais ils présentent une rugosité nettement plus faible que les dispositifs réalisés à l'aide de colles réticulables [58] ou de PDMS [59].

Le schéma de la puce microfluidique complète (générateur de gouttes + chambres de visualisation) est représenté sur la figure Fig. 2.3. Les canaux représentés en noir ont une hauteur de  $11\ \mu\text{m}$  tandis que ceux en bleu ont une hauteur de  $27\ \mu\text{m}$ . La puce comprend deux grandes chambres identiques de largeur 5 mm. Une des chambres est utilisée pour étudier la dynamique de l'émulsion. L'autre chambre sert à évacuer les gouttes pendant l'établissement du régime stationnaire du Flow-Focusing. En effet, lorsqu'on impose les débits au

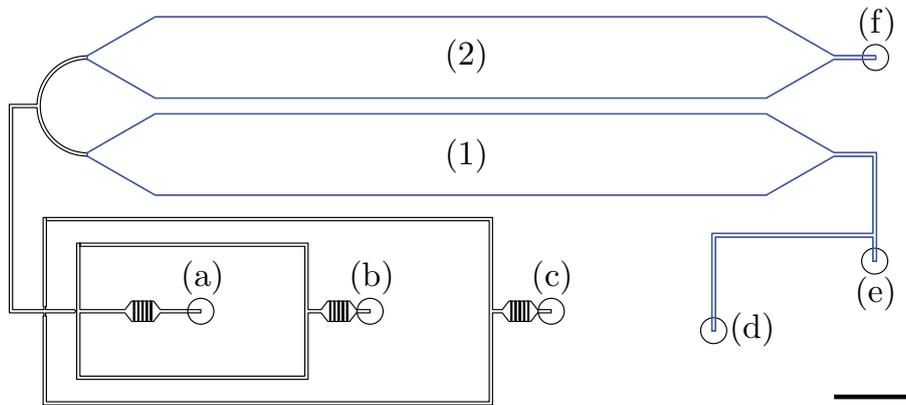


FIGURE 2.3: Schéma de la puce microfluidique en verre. La partie noire correspond au dispositif pour la production de l'émulsion (Flow-Focusing + dilueur), la hauteur des canaux y est de  $11\ \mu\text{m}$ . La partie bleue est constituée de deux grandes chambres de hauteur  $27\ \mu\text{m}$  et de largeur 5 mm. La chambre (1) est celle où se font les observations expérimentales. La chambre (2) sert à évacuer les gouttes polydisperses produites lors du régime transitoire du Flow-Focusing. Les fluides sont injectés par les entrées (a), (b) et (c). Les sorties (d), (e) et (f) permettent d'évacuer les fluides. Barre d'échelle : 5 mm.

niveau du Flow-Focusing, un régime transitoire de quelques secondes prend place avant l'établissement du régime stationnaire. Les gouttes produites pendant le transitoire sont polydisperses et il convient de s'en débarrasser. Le canal "poubelle" (2) est ouvert pendant le régime transitoire et accueille les gouttes polydisperses. Après l'établissement du régime stationnaire, on ferme le canal (2) et on ouvre le canal de visualisation (1) à l'aide de vannes extérieures au dispositif. Avec cette procédure, on obtient une émulsion parfaitement monodisperse et homogène dans le canal (1).

Pour notre étude, les gouttes produites dans le FF ont un diamètre de  $33.4 \mu\text{m}$ . Celui-ci est légèrement supérieur à la hauteur de la chambre de visualisation qui est de  $27 \mu\text{m}$ . Les gouttes qui forment l'émulsion dans le canal de visualisation sont donc légèrement aplaties en forme de disques.

Avant de lancer une expérience, le dispositif en verre est placé dans un rayonnement UV intense dans une enceinte remplie d'ozone (nettoyeur UV/Ozone). Cela permet de nettoyer les surfaces des traces de composés organiques et de rendre les parois du dispositif hautement hydrophiles. De cette manière, on s'assure que les gouttes ne mouillent pas les parois puisqu'un fin film d'eau est toujours présent entre les gouttes et celles-ci.

### 2.1.3 Contrôle de l'écoulement

Pour produire les gouttes et mettre en mouvement l'émulsion, on impose les débits d'injection des fluides dans le dispositif microfluidique. Ainsi les trois entrées (a), (b) et (c) du dispositif (voir Fig. 2.3) sont reliées à des pousse-seringues de précision (Cetoni Nemesys). Pour minimiser l'effet de "stick-slip" dû au frottement du piston de la seringue avec la paroi intérieure de celle-ci, on utilise des seringues de haute qualité (Hamilton 1700 series). Dans nos expériences, la chambre d'observation est approvisionnée en permanence en gouttes et on observe l'écoulement de l'émulsion au centre du canal. Les débits d'injections dans le Flow-Focusing et dans le dilueur déterminent la fraction surfacique occupée par l'émulsion. Ils fixent également la vitesse d'écoulement de la phase aqueuse dans le canal. Ainsi la fraction surfacique de l'émulsion et la vitesse d'écoulement du fluide ne sont pas des paramètres indépendants. Nous verrons que cela n'a pas d'incidence pour les mesures du chapitre suivant.

## 2.2 Acquisition des données

L'émulsion est observée au centre de la chambre à l'aide d'un microscope à zoom Nikon AZ100 (microscopie en transmission). Le dispositif est éclairé en lumière ultra-violette pour tirer avantage de la fluorescence de la phase aqueuse. Les expériences sont filmées à l'aide d'une caméra CCD de 4 MegaPixels en codage 8 bits (Basler Aviator av2300-25gm). Les images sont prises à une fréquence de 45 images par seconde pour pouvoir reconstituer les trajectoires des gouttes. A cette fréquence et au grossissement utilisé (qui doit permettre de

détecter les gouttes de manière individuelle), le champ observé a une longueur de 2.70 mm et une largeur de 1.03 mm (Fig. 2.4 b.). L'acquisition des images sur le disque dur est réalisée à l'aide d'un VI Labview mis au point par Bertrand Levache et Raphaël Jeanneret.

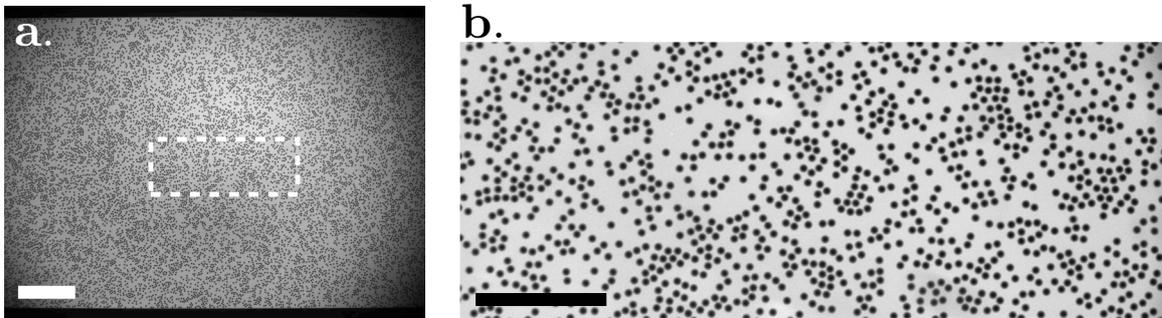


FIGURE 2.4: **a.** Image d'une émulsion dans le canal d'observation. Le canal a une largeur de 5 mm. Le carré en pointillés blancs indique le champ d'observation pour les expériences. Barre d'échelle : 1 mm. **b.** Champ d'observation où l'on détecte les positions des gouttes. La zone d'observation mesure 2.70 mm de long pour 1.03 mm de large. Barre d'échelle : 500  $\mu\text{m}$ .

## 2.3 Analyse des données

### 2.3.1 Détection des particules

La première étape dans le traitement des images consiste à détecter les positions des gouttes à chaque pas de temps (i.e. sur chaque image). Pour cela, j'ai utilisé le logiciel de traitement d'images gratuit ImageJ. L'idée de l'algorithme utilisé est de détecter les zones dont la luminosité contraste avec celle du fond. Si les zones ainsi détectées ont une forme et une surface comparables à celles attendues pour une particule, l'algorithme calcule les positions de leurs centres de masse. Pour chaque image, on obtient une liste avec les positions de tous les centres de masse des gouttes. Cette méthode de détection permet une résolution subpixel sur les positions des centres des particules. Les étapes nécessaires à la mise en place de l'algorithme de détection sont résumées ci-dessous et illustrées dans la figure Fig. 2.5.

1. On divise l'image brute par une image du background (i.e. sans les particules) prise avant l'injection des gouttes.
2. On applique un seuil d'intensité à l'image obtenue afin de la binariser. Les particules apparaissent alors comme des cercles noirs sur un fond blanc.

3. On applique un filtre sur l'aire et la forme géométrique des disques définis par les cercles noirs. Si un cercle noir est bien rond et que l'aire qu'il délimite correspond à celle attendue pour une particule, on calcule la position de son centre de masse.

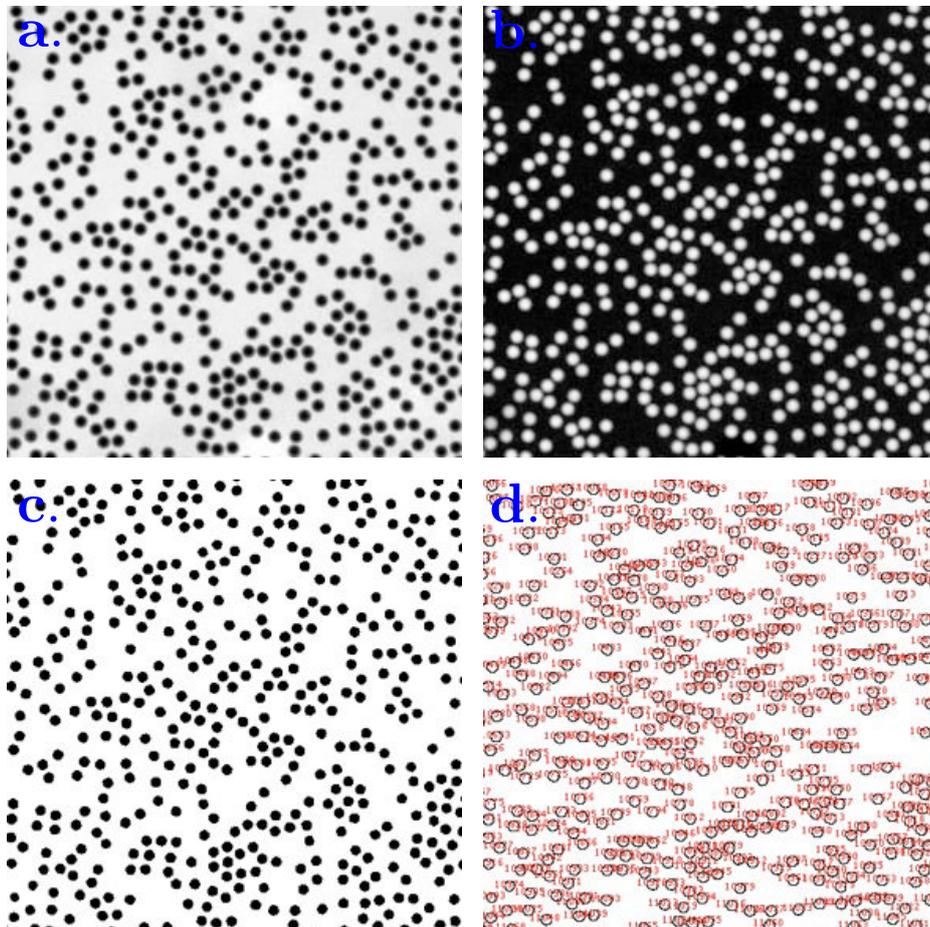


FIGURE 2.5: Étapes pour la détection des particules à partir de l'image brute. **a.** Image brute. **b.** Image après soustraction du background. **c.** Image après seuillage puis binarisation. **d.** Détection des contours des particules.

### 2.3.2 Tracking des particules

L'étape de détection permet d'obtenir la liste des positions à chaque pas de temps mais ne permet pas de suivre les trajectoires des particules. En effet, chaque pas de temps est traité de manière indépendante et les particules n'ont pas un identifiant fixe (un label) qu'elles conservent à chaque pas de temps. L'étape de tracking consiste à reconstruire les trajectoires des particules (i.e. à leur attribuer un label fixe) à partir des fichiers positions obtenus par l'étape de détection. Cette procédure de reconstruction est complexe à pro-

grammer et j'ai utilisé au cours de ma thèse la version Matlab de l'algorithme très utilisé de J.C. Crooker et D.G. Grier [60]. Cet algorithme est basé sur la minimisation de tous les déplacements possibles des particules entre deux images consécutives. Pour que l'algorithme converge et identifie la plupart du temps de manière univoque chaque particule, il faut que le déplacement maximum des particules entre deux pas de temps soit plus faible que la distance moyenne entre les particules. En pratique, et c'est ce que nous avons fait dans cette thèse, il convient même de filmer à une fréquence assez élevée pour que le déplacement d'une particule entre deux pas de temps soit inférieur à son rayon. Alors, l'algorithme ne peut jamais confondre deux particules, même lorsque celles-ci sont en contact.

### 2.3.3 Champ de densité et fluctuations

Notre but principal est d'étudier la dynamique collective à grande échelle de l'émulsion. Pour cela, on étudie le champ de densité de l'émulsion et ses fluctuations. Le champ de densité est obtenu en appliquant un facteur de forme Gaussien de largeur  $R_d/15$  aux fichiers positions des gouttes où  $R_d$  est le rayon des gouttes. La largeur de la Gaussienne correspond typiquement à la précision sur la détection du centre de masse des particules. Ce choix pour la forme des gouttes n'est pas crucial pour les mesures présentées dans le chapitre suivant. Tout facteur de forme de largeur assez faible pour ne pas influencer les mesures aux grandes échelles que nous avons effectuées aurait convenu aussi bien. Les fluctuations du champ de densité sont étudiées en mesurant dans l'espace de Fourier le spectre de puissance des fluctuations. Pour cela, on calcule dans un premier temps de manière analytique la transformée de Fourier spatiale du champ de densité à chaque pas de temps (le choix d'un facteur de forme Gaussien permet de trouver facilement la formule analytique de la transformée de Fourier spatiale). Le spectre de puissance est alors obtenu en calculant numériquement (FFT Matlab) la transformée de Fourier temporelle du champ dans l'espace des vecteurs d'onde. Le module au carré  $|\rho_{\mathbf{q},\omega}|^2$  de la transformée de Fourier spatio-temporelle du champ de densité de l'émulsion montre le spectre de puissance des fluctuations de densité. Si la dynamique des fluctuations de densité est propagative (ondes de densité), le spectre de puissance est piqué dans le plan  $(\omega, \mathbf{q})$  (voir Fig. 2.6). La relation de dispersion des ondes est obtenue en détectant pour chaque pulsation  $\omega$  le pic correspondant suivant  $\mathbf{q}$ . La gamme des vecteurs d'onde accessibles à la mesure est bien sûr limitée par la taille de la fenêtre d'observation. Ainsi, l'amplitude du plus petit vecteur d'onde que l'on peut sonder dans notre expérience correspond à  $qW = 11.6$  où  $W$  est la largeur du canal. Cela correspond à des longueurs d'onde de l'ordre de la taille de la fenêtre d'observation. La résolution à grands vecteurs d'onde et grandes pulsations est limitée par le taux d'acquisition des images (les longueurs d'onde que l'on peut sonder doivent être plus grandes que le déplacement des particules entre deux images). Dans nos mesures, on se limite à des vecteurs d'onde plus petits que  $qR_d = 4$  (ce qui correspond à une longueur

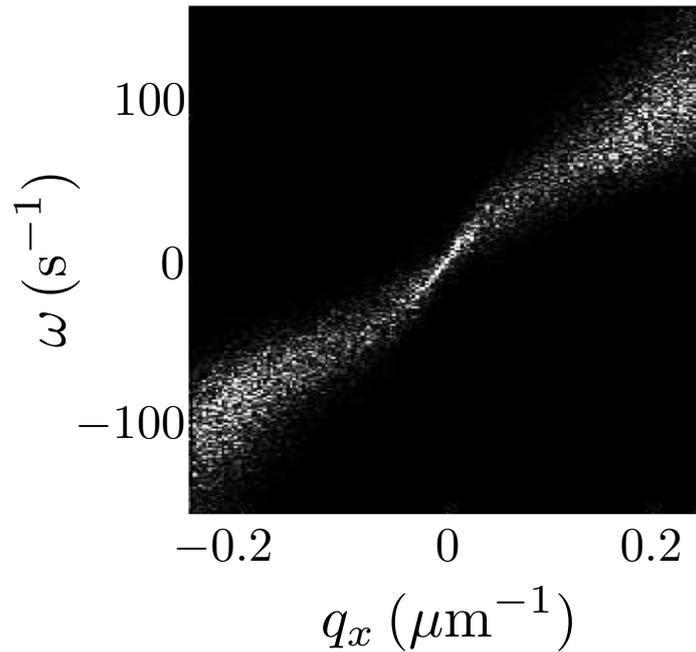


FIGURE 2.6: Exemple d'un spectre de puissance des fluctuations de densité,  $|\rho_{\mathbf{q},\omega}|^2$ , pour une émulsion en écoulement. Le spectre est tracé dans le plan  $(q_x, \omega)$  pour un  $q_y$  fixé. L'amplitude de  $|\rho_{\mathbf{q},\omega}|^2$  est codée en niveau de gris. Le fait que  $\omega$  soit réelle et que l'amplitude du spectre soit localisée dans le plan  $(q_x, \omega)$  indique que la dynamique des fluctuations de densité est propagative.

d'onde d'environ  $1.5R_d$ ).

## 2.4 Création de particules de formes arbitraires et de structures ordonnées *in-situ*

Au cours des premiers mois de ma thèse, j'ai mis au point et utilisé un montage pour étudier la dynamique sous écoulement de structures ordonnées de particules en interaction hydrodynamique. Les résultats qualitatifs de cette étude seront présentés brièvement au chapitre 4. Des résultats théoriques concernant l'écoulement de structures cristallines en géométrie confinée sont également présentés dans le chapitre 4.

La technique choisie pour le contrôle de la position et de la forme des particules est appelée "flow lithography" [61]. On injecte dans un circuit microfluidique une solution polymère photo-réticulante de polyéthylène glycol diacrylate (PEGDA) et de photo-initiateur. Cette solution durcit lorsqu'elle est exposée à un rayonnement UV. Pour synthétiser les particules en suspension *in-situ*, on éclaire un masque avec une lampe UV. Si le plan du masque est conjugué avec celui du circuit microfluidique par rapport à l'objectif d'un microscope,

l'image du masque éclairé aux UV se trouve dans le circuit et on y réticule alors le motif dessiné sur le masque (Fig. 2.7). La vidéo disponible à l'adresse [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/chaine\\_reticulation.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/chaine_reticulation.mov) montre la production *in-situ* de particules rectangulaires de longueur  $50\ \mu\text{m}$  et de largeur  $10\ \mu\text{m}$ . La hauteur des particules est légèrement inférieure à la hauteur du canal,  $h = 25\ \mu\text{m}$ . Pour utiliser cette technique, il est crucial que les parois de notre dispositif soient perméables à l'oxygène. Pour cela, nous avons fabriqué des dispositifs en PDMS (PolyDiMethylSiloxane, élastomère). La technique de fabrication de dispositifs microfluidiques en PDMS est largement utilisée depuis de nombreuses années dans la communauté microfluidique. Je ne détaille pas ici le protocole de fabrication des circuits en PDMS et j'invite les lecteurs et lectrices à consulter la référence [62] pour plus de détails. Le fait que les parois du dispositif soient perméables à l'oxygène permet d'éviter que les particules n'adhèrent aux parois du circuit. En effet, l'oxygène inhibe la réaction de réticulation au niveau des bords. On conserve ainsi au dessus et en dessous des particules une couche de lubrification de PEGDA non réticulée. Une fois fabriquées, les particules sont donc en suspension dans le PEGDA non réticulé et on peut étudier leur comportement sous écoulement en imposant un débit ou un gradient de pression au circuit.

Avec cette technique de lithographie, on peut obtenir des particules de forme quelconque (ou plutôt des formes 2D quelconques étendues dans la direction verticale) puisqu'il suffit de dessiner le motif souhaité sur le masque. De plus, la taille des particules dépend du grossissement de l'objectif utilisé. Enfin, cette technique permet de réaliser des structures ordonnées puisque la position initiale des particules est définie par le réseau dessiné sur le masque (Fig. 2.8). Une des difficultés majeures de l'expérience consiste à obtenir un éclairage à la fois de forte intensité et bien homogène au niveau du masque pour réticuler tous les motifs de la même manière. Le trajet optique dans le microscope doit également minimiser les aberrations pour la même raison. Ces difficultés nous limitent dans le cadre de notre montage à l'étude de structures de petites tailles.

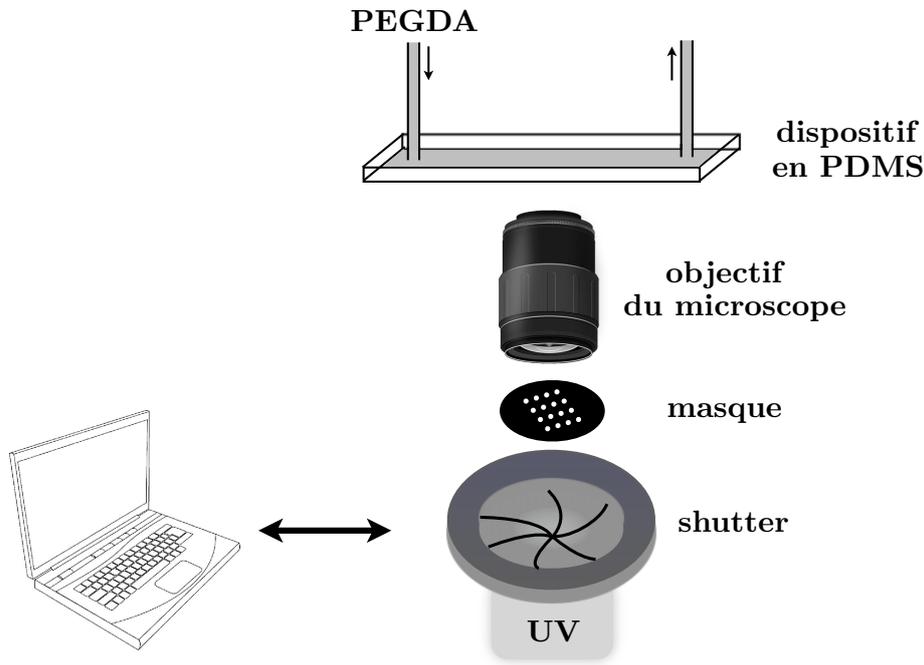


FIGURE 2.7: Schéma de principe de la lithographie optique utilisée pour la synthèse des particules. On éclaire un masque avec une lumière UV. Le plan du masque est conjugué optiquement avec le plan d'observation du microscope. Si le milieu du circuit correspond au plan d'observation, on va venir réticuler le motif du masque dans le canal microfluidique. Le temps d'éclairage du masque est géré par un shutter électronique ou mécanique contrôlé par ordinateur.

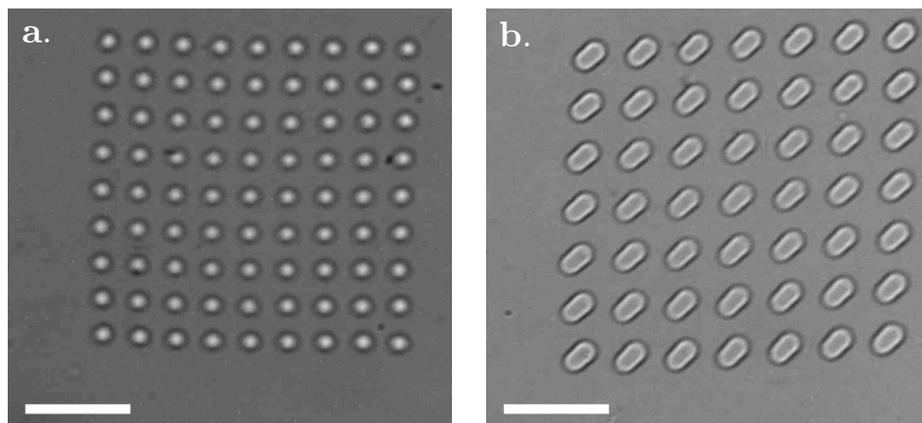


FIGURE 2.8: Images au microscope de réseaux de particules polymères obtenus par lithographie optique dans des circuits en PDMS remplis de PEGDA. **a.** Réseau carré de  $9 \times 9$  particules en forme de disques. Barre d'échelle :  $250 \mu\text{m}$ . **b.** Réseau carré de  $7 \times 7$  particules en forme de "patatoïdes". Barre d'échelle :  $250 \mu\text{m}$ .



## Ondes de densité dans une émulsion bidimensionnelle advectée

Dans ce chapitre, je présente notre étude expérimentale et théorique de la dynamique collective d'une émulsion bidimensionnelle advectée en géométrie confinée. Dans un fluide non borné soumis à un champ de vitesse uniforme, la dynamique d'une suspension diluée constituée de particules de même densité que le fluide est triviale. Toutes les particules se déplacent à la même vitesse que le fluide et les particules n'interagissent pas entre elles. En géométrie confinée, la friction avec les parois confinantes complexifie le problème. Même si les particules sont soumises à un écoulement uniforme de type bouchon, leur dynamique est non triviale. Lorsqu'une particule solide ou déformable est advectée par un fluide porteur dans un milieu confiné, la friction sur les parois confinantes (due à l'échange de quantité de mouvement qui a lieu dans le film de lubrification entre la particule et la paroi) implique que la vitesse de la particule est inférieure à la vitesse locale du fluide. Ainsi, la présence d'une particule de taille comparable aux dimensions du confinement entraîne une perturbation de l'écoulement du fluide porteur. Lorsque plusieurs particules sont advectées par le fluide, chacune d'elles perturbe l'écoulement et donc la force exercée par le fluide sur les autres particules. On dit que les particules sont en interaction hydrodynamique. Ces interactions hydrodynamiques sont à l'origine d'une dynamique collective complexe et surprenante. Par exemple, un train de gouttes régulièrement espacées (cristal 1D), simplement advecté dans un écoulement de type bouchon, donne lieu à la propagation non amortie de phonons [20]. Cette propagation non amortie est pour le moins surprenante puisque le système ne présente ni inertie, ni interactions potentielles. Cela contraste avec les ingrédients clés des systèmes modèles utilisés couramment pour l'étude de la propaga-

tion d'ondes (typiquement des masses reliées entre elles par des ressorts). Néanmoins, une modélisation simple des interactions hydrodynamiques entre les gouttes permet de reproduire de manière convaincante les observations expérimentales [20]. Dans ce chapitre, on présente la caractérisation expérimentale de la dynamique 2D d'une émulsion confinée en écoulement. On montre que l'émulsion est le siège d'ondes de densité qui se propagent à toutes les échelles et dans toutes les directions sans être amorties. En étendant la modélisation précédemment citée, on montre que la combinaison des interactions hydrodynamiques et des interactions de volume exclu explique de manière quantitative les résultats expérimentaux. Dans ce chapitre, je détaille dans un premier temps la forme des interactions hydrodynamiques dans les géométries de type Hele-Shaw utilisées pour nos expériences. Ensuite, j'ai pris le parti de reproduire tel quel l'article publié dans *Physical Review Letters*. En effet, le montage expérimental ayant déjà été introduit au chapitre précédent, l'article présente de manière exhaustive les résultats expérimentaux et théoriques auxquels nous avons abouti. Dans une dernière partie, je discute des perspectives de ce travail, et notamment de son extension à l'étude du problème de la sédimentation dans des milieux non confinés.

### 3.1 Interactions hydrodynamiques dans une cellule de Hele-Shaw

#### 3.1.1 Écoulement dans une cellule de Hele-Shaw

On appelle cellule de Hele-Shaw un dispositif microfluidique constitué de deux plaques parallèles séparées par une distance  $h$  très faible devant les dimensions des plaques dans le plan de l'écoulement (Fig. 3.1). Les chambres microfluidiques utilisées pour les expériences

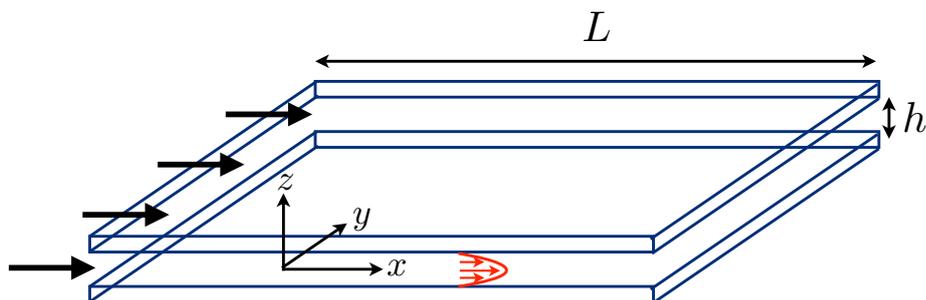


FIGURE 3.1: Schéma d'une cellule de Hele-Shaw constituée de deux plaques parallèles séparées d'une distance  $h$ . Les échelles de longueur dans le plan  $(x, y)$  sont très grandes devant la hauteur du dispositif,  $L \gg h$ . Le profil parabolique de la composante suivant  $z$  de l'écoulement (dans la direction  $x$ ) est représenté en rouge.

de ce chapitre (voir sec. 2.1) ont une hauteur  $h = 27 \mu\text{m}$  très faible devant la largeur  $W = 5 \text{ mm}$  des canaux. Ce sont donc des cellules de Hele-Shaw. Si on applique un débit constant en entrée du dispositif, l'écoulement stationnaire suit un profil laminaire de Poiseuille avec des conditions de non-glissement au niveau des parois. Si on moyenne l'écoulement sur la hauteur  $h$  du dispositif, on montre facilement que le champ de vitesse hydrodynamique dans le plan  $(x, y)$  découle d'un potentiel de vitesse  $\Phi(x, y)$  :

$$\langle \mathbf{v}(x, y) \rangle_h = \nabla_{\parallel} \Phi(x, y) \quad (3.1)$$

où  $\langle \mathbf{v}(x, y) \rangle_h$  est l'écoulement moyenné suivant la hauteur  $h$  du canal et  $\nabla_{\parallel}$  représente le gradient dans le plan de l'écoulement (plan parallèle aux plaques).  $\Phi(x, y)$  est le potentiel des vitesses, son expression est donnée par :

$$\Phi(x, y) = -\frac{h^2}{12\eta} P(x, y) \quad (3.2)$$

où  $P(x, y)$  est le champ de pression et  $\eta$  est la viscosité du fluide. Le calcul complet pour aboutir à ce résultat est présenté dans l'annexe 3.4.1. Pour une particule ressentant la totalité du profil de vitesse dans la direction  $z$ , il n'y a pas de perte de généralité en ne considérant que la moyenne de la vitesse sur la hauteur.

### 3.1.2 Perturbation de l'écoulement engendrée par un obstacle cylindrique

Avant de chercher à décrire les interactions hydrodynamiques entre des particules advectées par un fluide porteur dans une cellule de Hele-Shaw, il est utile de calculer la perturbation à l'écoulement engendré par un obstacle cylindrique fixe. Supposons qu'on applique à notre dispositif microfluidique un débit ou un gradient de pression constant dans la direction longitudinale  $x$ . En l'absence d'obstacle et loin des parois latérales du canal, l'écoulement moyenné suivant la hauteur du canal est uniforme et découle d'un potentiel. Les composantes de la vitesse du fluide en l'absence d'obstacle sont :

$$v_x = v = \text{cte} ; v_y = 0 \quad (3.3)$$

Le potentiel de vitesse en l'absence d'obstacle est donc :

$$\Phi_{\text{uniforme}} = vx \quad (3.4)$$

ou en coordonnées cylindriques :

$$\Phi_{\text{uniforme}} = vr \cos(\theta) \quad (3.5)$$

Calculons maintenant la perturbation à l'écoulement engendrée par un obstacle cylindrique fixe de rayon  $R$ , de hauteur comparable à celle du canal, et placé à l'origine en  $\mathbf{r} = \mathbf{0}$ . Rappelons que dans une géométrie de type Hele-Shaw, le champ de vitesse du fluide moyenné sur

la hauteur du canal est potentiel. En rajoutant la condition d'incompressibilité du fluide, trouver la vitesse du fluide revient à résoudre l'équation de Laplace,  $\nabla^2\Phi = 0$ , avec les conditions aux limites appropriées. Dans notre cas, les conditions aux limites que doit vérifier l'écoulement sont :

$$\begin{cases} v_\infty = v \\ v_r(r = R) = 0 \quad (\text{impénétrabilité du liquide dans l'obstacle}) \end{cases} \quad (3.6)$$

Comme il est d'usage dans les problèmes laplaciens, on peut chercher à écrire la perturbation à la solution homogène sous la forme d'une somme (éventuellement infinie) de multipôles, qui correspondent dans le cas de l'hydrodynamique à des combinaisons de sources et de puits pour le liquide. Les termes de type monopôle correspondent à des sources ou des puits isolés. Manifestement ce n'est pas le cas d'un obstacle qui ne génère ni n'élimine de liquide. Le premier terme *a priori* non-nul dans le développement multipolaire est donc le dipôle. Vérifions maintenant si rajouter un terme dipolaire au potentiel non perturbé permet de satisfaire aux conditions aux limites Eq. 3.6. Ecrivons le potentiel des vitesses sous la forme :

$$\Phi = \Phi_{\text{uniforme}} + \Phi_{\text{dipole}} = vr \cos(\theta) + \frac{\sigma \cos(\theta)}{2\pi r} \quad (3.7)$$

Le second terme de l'équation ci-dessus correspond au potentiel créé par un doublet source-puits de même débit  $Q$ , alignés selon l'axe des  $x$  et séparés d'une distance  $d$  avec  $d \rightarrow 0$  en maintenant le produit  $Qd$  constant. Le paramètre  $\sigma = Qd$  est appelé moment du dipôle. Les composantes du vecteur vitesse qui découle de ce potentiel sont :

$$v_r = \frac{\partial\Phi}{\partial r} = \left(v - \frac{\sigma}{2\pi r^2}\right) \cos(\theta) \quad ; \quad v_\theta = \frac{1}{r} \frac{\partial\Phi}{\partial\theta} = -\left(v + \frac{\sigma}{2\pi r^2}\right) \sin(\theta) \quad (3.8)$$

Le champ de vitesse obtenu est la somme de l'écoulement uniforme de vitesse  $v$  selon l'axe des  $x$  et d'un écoulement perturbatif de forme dipolaire centré sur l'obstacle (voir Fig. 3.2). Vérifions maintenant si ce champ de vitesse respecte bien les conditions aux limites Eq. 3.6. Le champ de vitesse dipolaire engendré par l'obstacle décroît en  $1/r^2$  ce qui implique que la première condition est bien vérifiée. La seconde condition, l'impénétrabilité du fluide dans la particule, nous dit que la composante radiale de la vitesse doit être nulle en  $r = R$  quel que soit  $\theta$ . Cette condition est automatiquement vérifiée pour peu que le moment du dipôle soit égal à  $\sigma = 2\pi v R^2$ . L'ajout d'un terme dipolaire au potentiel uniforme permet donc de satisfaire aux conditions aux limites nouvelles imposées par la présence de l'obstacle. Le développement multipolaire de la perturbation se réduit dans le cas d'un obstacle cylindrique à un terme de dipôle. Comme la solution d'un problème laplacien est unique (si les conditions aux limites sont fixées), on peut conclure que l'obstacle engendre une perturbation de forme dipolaire à l'écoulement uniforme.

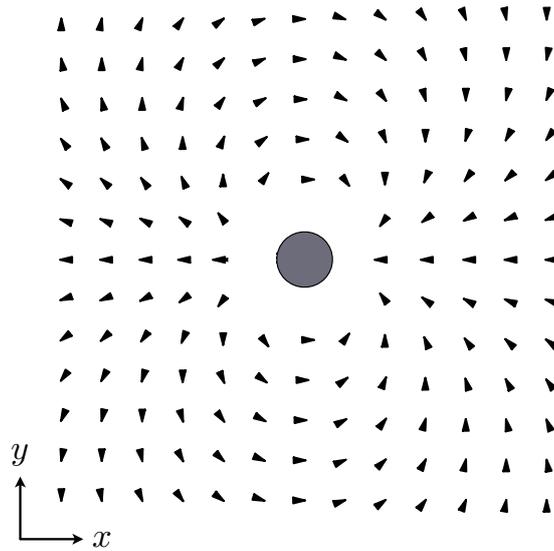


FIGURE 3.2: Lignes de champ de la perturbation dipolaire au champ de vitesse engendrée par la présence d'un obstacle cylindrique dans un écoulement de direction  $x$ .

### 3.1.3 Transport de particules et interactions hydrodynamiques

Considérons maintenant le cas de gouttes advectées par un fluide porteur dans un dispositif de type Hele-Shaw. Nos gouttes ont un diamètre légèrement supérieur à la hauteur des canaux,  $R_d/h = 0.62$  où  $R_d$  est le rayon des gouttes. A cause de la friction avec les parois, une goutte isolée se déplace moins vite que le fluide porteur. La dynamique d'une goutte isolée est décrite à l'aide d'un coefficient de mobilité constant,  $\mu$ , par la relation de proportionnalité suivante [20, 63] :

$$\dot{\mathbf{r}} = \mu \mathbf{v} \quad (3.9)$$

où  $\dot{\mathbf{r}}$  est la vitesse de la goutte,  $\mu < 1$  est le coefficient de mobilité et  $\mathbf{v}$  est la vitesse que le fluide aurait en  $\mathbf{r}$  si la goutte était absente. Pour une particule rigide, on montre par analyse dimensionnelle que le coefficient de mobilité  $\mu$  ne dépend que de rapports d'aspect géométriques ( $R_d/h$ , ...).  $\mu$  est alors une constante qui ne dépend ni de la vitesse du fluide ni de celle de la particule. Pour des particules déformables, comme les gouttes, d'autres nombres sans dimensions sont à prendre en compte : le rapport entre la viscosité de la phase dispersée et celle du fluide, ou encore le nombre capillaire qui quantifie la déformation des particules en fonction de l'écoulement. Ce dernier nombre, s'il est non nul, rend la relation entre la vitesse des particules et la vitesse locale du fluide non linéaire. Dans toutes nos expériences, le nombre capillaire est très petit devant 1, ce qui nous permet de considérer le coefficient  $\mu$  comme constant.

Du point de vue du fluide porteur, une goutte se comporte alors comme un obstacle cylin-

drique d'axe perpendiculaire à l'écoulement et de vitesse  $\dot{\mathbf{r}} < \mathbf{v}$ . Comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, la goutte va donc perturber l'écoulement en ajoutant une contribution dipolaire à l'écoulement uniforme. L'amplitude de cette perturbation est proportionnelle à la différence entre la vitesse que le fluide aurait en l'absence de perturbation et la vitesse de la goutte. La perturbation dipolaire du champ de vitesse du fluide au point  $\mathbf{r}'$  par une goutte située en  $\mathbf{r}$  s'écrit :

$$\mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|^2} \left[ \frac{(\mathbf{r}' - \mathbf{r})(\mathbf{r}' - \mathbf{r})}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|^2} - \mathbb{I} \right] \cdot \sigma \quad (3.10)$$

où le moment dipolaire est donné par :

$$\sigma = 2\pi b^2(\mu\mathbf{v} - \mathbf{v}) \quad (3.11)$$

et où  $b$  est le rayon de la goutte dans le plan de l'écoulement.

Lorsque plusieurs gouttes sont présentes, chacune perturbe l'écoulement vu par les autres. C'est en ce sens qu'on dit qu'elles sont en interaction hydrodynamique. En théorie, pour trouver l'écoulement en un point, il faudrait résoudre l'équation de Laplace en satisfaisant simultanément toutes les conditions aux limites aux surfaces des gouttes. En pratique, on suppose que le champ de vitesse créé par l'ensemble des gouttes est la somme des champs dipolaires créés par chacune indépendamment. Cette approximation n'est en théorie valable que pour des systèmes dilués. Nous verrons néanmoins que le modèle développé sur cette base permet un bon accord avec l'expérience pour des fractions surfaciques aussi élevées que 50%. Dans cette approximation, la goutte  $i$  de position  $\mathbf{r}_i(t)$  advectée par un écoulement extérieur de vitesse  $\mathbf{v}$  ainsi que par les champs de vitesse dipolaires induits par toutes ses voisines a pour vitesse :

$$\dot{\mathbf{r}}_i = \mu \left[ \mathbf{v} + \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) \right] \quad (3.12)$$

Par l'intermédiaire du fluide, les particules exercent donc entre elles des interactions hydrodynamiques de longue portée ( $\sim 1/r^2$ ). A courte distance, les interactions sont évidemment plus complexes (effets de volume exclu, champ de vitesse complexe entre deux gouttes très proches, ...). Néanmoins le modèle de couplage dipolaire présenté ci-dessus donne des résultats très bons tant qu'on s'intéresse à la dynamique sur des échelles plus grandes que la distance inter-particules [20, 64]. Dans les sections suivantes, on étudie expérimentalement et théoriquement ce problème à N-corps.

## 3.2 Etude expérimentale et théorique de la dynamique d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée

### 3.2.1 Introduction

Je présente maintenant les travaux expérimentaux et théoriques que nous avons effectués sur la dynamique d'un ensemble de gouttes en interactions hydrodynamiques s'écoulant dans un dispositif de type cellule de Hele-Shaw. Une vidéo disponible à l'adresse [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/video\\_S1.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/video_S1.mov) montre la dynamique collective complexe que l'on observe dans ces systèmes. Une émulsion en écoulement dans une cellule de Hele-Shaw présente d'importantes fluctuations de densité. Des agrégats de gouttes se forment et se défont en permanence dans l'émulsion. En regardant le film plus attentivement, on remarque que ces agrégats se forment à toutes les échelles et que ces fluctuations de densité semblent se propager au sein de l'émulsion. L'article inséré ci-dessous caractérise de manière quantitative les observations faites ci-dessus. On montre qu'en effet les fluctuations de densité ont bien une dynamique propagative et ce à toutes les échelles. La relation de dispersion des ondes de densité est mesurée expérimentalement pour plusieurs émulsions de fractions surfaciques différentes. Pour chacune d'elle, la propagation des ondes de densité est non-dispersive pour les modes de grandes longueurs d'onde et dispersive pour les longueurs d'onde plus petites que quelque fois la distance typique inter-particules. Un modèle est développé pour tenter de comprendre et de reproduire de manière quantitative les mesures expérimentales. En utilisant le modèle de couplage dipolaire entre les gouttes présenté dans la section précédente, et en l'affinant pour prendre en compte les effets de volume exclu entre les gouttes, on est capable de reproduire de manière quantitative les observations expérimentales, et ce sans paramètre ajustable. La dernière section de l'article montre que ces travaux ont en fait une portée qui dépasse celle des suspensions en écoulement dans des cellules de Hele-Shaw. En effet, les ingrédients physiques à l'origine des ondes de densité observées dans nos émulsion en écoulement se retrouvent dans d'autres systèmes *a priori* complètement différents.

### 3.2.2 Article : Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids

L'article "Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids" (*Phys. Rev. Lett.* **111**, 118301 (2013)) est reproduit ci-dessous avec une mise en page adaptée au format du manuscrit. Ma participation aux travaux présentés dans cet article concerne à la fois les aspects expérimentaux (avec Raphaël Jeanneret), le traitement et l'analyse des données, et le développement du modèle théorique (avec Jean-Baptiste Caussin et Eric Lauga).

# Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids

Nicolas Desreumaux,<sup>1</sup> Jean-Baptiste Caussin,<sup>2,1</sup> Raphael Jeanneret,<sup>1</sup> Eric Lauga,<sup>3</sup> and Denis Bartolo<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup>*Laboratoire de physique et mécanique des milieux hétérogènes, PMMH, ESPCI ParisTech, CNRS UMR 7636, Université Paris 6 et Université Paris 7, 10 rue Vauquelin, 75005 Paris, France*

<sup>2</sup>*Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure de Lyon, Université de Lyon and CNRS, 46, allée d'Italie, F-69007 Lyon, France*

<sup>3</sup>*Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California San Diego, 9500 Gilman Drive, La Jolla CA 92093-0411, USA*

We address the collective dynamics of non-Brownian particles cruising in a confined microfluidic geometry and provide a comprehensive characterization of their spatiotemporal density fluctuations. We show that density excitations freely propagate at all scales, and in all directions even though the particles are neither affected by potential forces nor by inertia. We introduce a kinetic theory which quantitatively accounts for our experimental findings, demonstrating that the fluctuation spectrum of this non-equilibrium system is shaped by the combination of truly long-range hydrodynamic interactions and local collisions. We also demonstrate that the free propagation of density waves is a generic phenomenon which should be observed in a much broader range of hydrodynamic systems.

PACS numbers: 82.70.-y, 47.57.-s, 47.15.gp

Understanding the collective dynamics of non-Brownian particles in viscous fluids is a long-standing challenge in fluid mechanics. For example, many features of sedimentation in a quiescent fluid are still poorly understood. Rather than falling along straight lines, as an isolated particle does, sedimenting particles experience swirling motion correlated over large finite distance, the physical origin of which has been under debate for more than 30 years [1, 2]. The conceptual complexity of this collective dynamics contrasts with the formal simplicity of the (linear) Stokes equation that rules low-Reynolds-number flows. Immersed bodies generically affect both the momentum and the mass transfers of the fluid, even when not driven by external fields. As a result, long-range interactions arise between the particles due to the interplay between the local velocity of the fluid and the motion of the particles. They vanish only for uniform flows, for which the particles would be all advected at the same speed as the fluid, irrespective of their spatial distribution. Such a condition is never achieved when the fluid is confined by rigid walls or obstacles. Friction with the bounding walls causes strong distortions of the flow field, inducing effective interactions between the particles [3–6]. As it turns out the transport of particle-laden fluid through rigidly confined geometries is involved in a number of industrial and natural processes, including filtration [7], colloid deposition on solid surfaces [8, 9], droplet-based microfluidics [10, 11], blood micro-flows [12], protein motion in lipid membranes [3], bacteria swarming [13, 14]. Understanding the particle transport in confined films is a necessary first step toward the description of particle traffic in more complex geometries such as ordered, or random porous networks. Recently, pioneering experiments probed the propagation of density heterogeneities in bidimensional emulsions and droplet streams [15, 16]. Focusing on a semi-local quantity, the droplet density averaged over the channel width, Beatus et al revealed the propagation of longitudinal nonlinear density waves, Burgers shocks, resulting from the linear variation of the droplet speed with the local density [15]. However, this observation does not account for the complexity of the structural [17], and spatiotemporal fluctuations observed at all scales in rigidly confined particle-laden fluids, regardless of their specific geometry, composition, and driving mechanism [13, 15, 17–19].

Here we combine advanced microfluidic experiments and kinetic theory to shed light on the collective dynamics of particles advected in shallow microchannels. We first characterize their density fluctuations. We show that they freely propagate, at all scales and in all directions, in a dispersive manner. We then quantitatively demonstrate how the interplay of hydrodynamic and steric interactions shape the fluctuation spectrum of the linear density waves. Finally, we close this letter by stressing that the impact of our results goes beyond microfluidic systems. We show how to use bidimensional microfluidic emulsions as a proxy to probe collective effects in a much broader range of hydrodynamic systems including diffusiophoretic suspensions, foams, or emulsions, cruising through porous media, and confined sedimentation.

We developed a model microfluidic experiment which made it possible to track the individual positions of hundred of thousands of identical droplets interacting hydrodynamically in a shallow channel. Briefly, the system consists of a monodisperse oil-in-water emulsion flowing in a shallow microchannel. The length and width of the channel,  $L \times W = 5 \text{ cm} \times 5 \text{ mm}$ , are much larger than its height,  $h = 27 \pm 0.1 \mu\text{m}$ , which compares with the droplet diameter, see Fig. 1. The emulsion is therefore confined in a quasi-2D geometry. The droplets are formed at a conventional flow-focusing junction followed by a dilution module. The fluid flow-rates are imposed by high-precision syringe pumps.

Etched-glass microchips ensure that the channel dimensions are unaffected by the flow conditions. In addition, the geometry of the junction, and the range of flow rates, are chosen so that the formation of the droplet was unaffected by the dilution flow. Therefore we accurately controlled both the droplet radius,  $R_d$ , and the average area fraction,  $\phi$ , occupied by the emulsion. Here, we report results obtained for  $R_d = 16.7 \pm 0.3 \mu\text{m}$  ( $R_d/h = 0.62$ ), and  $0.21 < \phi < 0.56$ . Varying the droplet sizes up to  $R_d \sim 2h$  does not qualitatively change our measurements. The droplets are visualized using fluorescence imaging. For each experiment we tracked  $\sim 10^5$  particle trajectories in a region close to the center of the main channel, Fig. 1B. For more details, see [25].

Without droplets, the fluid flow would be uniform along the  $x$ -direction in the observation region. This is evidenced by the linear trajectories followed by isolated droplets cruising along the channel. Conversely, even at the smallest surface fraction, the droplets undergo large fluctuations in their motion, as shown in the supplementary movie [26]. These fluctuations lead to the formation of particle clusters at all scales. These clusters are clearly seen to travel at a speed that is different from the mean droplet velocity. Density bands transverse to the flow are faster than the longitudinal ones. However, these clusters are transient structures, they form and break apart in a continuous fashion. Our purpose is to elucidate the physical mechanisms responsible for this complex and fluctuating dynamics. To quantify the spatiotemporal fluctuations of the droplet density field  $\rho(\mathbf{r}, t)$ , where  $\mathbf{r} = (x, y)$ , we measure its power spectrum. Introducing the Fourier transform of the local density,  $\rho_{\mathbf{q}, \omega} = \frac{1}{2\pi} \int \rho(\mathbf{r}, t) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} d\mathbf{r} dt$ , the power spectrum is defined as  $|\tilde{\rho}_{\mathbf{q}, \omega}|^2$ , where  $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) \equiv \rho(\mathbf{r}, t) - \langle \rho(\mathbf{r}, t) \rangle$ . Practically,  $\rho$  is computed from the particle positions as  $\rho(\mathbf{r}, t) \equiv \sum_i \mathcal{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t))$ , where  $\mathbf{r}_i(t)$  is the position of the  $i^{\text{th}}$  droplet, and where  $\mathcal{G}$  is a Gaussian shape function.

In Fig 2A, we show a cut of a typical power spectrum in the  $(\omega', q_x)$  plane. This example corresponds to  $\phi = 0.39$ , and to  $q_y R_d = 0.2$ . Several important comments are in order: (i) The power spectrum is localized in the Fourier space, which is the hallmark of propagative dynamics for the density fluctuations, as first noted in [15] for the specific case of the  $y$ -averaged density mode ( $q_y = 0$ ). We stress that compression modes propagate even though the droplets do not interact via potential forces, and even though their inertia is negligible compared to the viscous friction at this scale. These “sound” modes originate only from the hydrodynamic coupling between the advected particles; (ii) The curve on which the spectrum is peaked corresponds to the dispersion curve of the density waves. It deviates markedly from a straight line at moderate wavelengths. The hydrodynamic interactions do not merely renormalize the mean advection speed but cause the density fluctuations to propagate in a dispersive fashion; (iii) The global shape of the spectrum is conserved for every area fraction, and more surprisingly for every wave vector  $q_y$  provided that the wavelength remains larger than the particle size (see below).

In all that follows, we discard the trivial non-dispersive contribution due to the advection at the mean droplet velocity  $\langle \mathbf{v}_d \rangle$ . We focus on the density fluctuations in the frame moving at  $\langle \mathbf{v}_d \rangle$ , and introduce the reduced pulsation  $\omega \equiv \omega' - \langle v_d \rangle q_x$ . Experiments done at different area fractions, and thus at different continuous phase velocities due to dilution, are compared by normalizing the wave vectors by  $R_d^{-1}$ , and the pulsations by  $v_F/R_d$ , where  $v_F$  is the velocity of the continuous phase imposed by the syringe pumps. Fig 2B shows a typical dispersion relation:  $\omega = \omega(q_x, q_y)$ , obtained for  $\phi = 0.39$ . The spectrum is symmetric along the  $q_y$  direction as expected from the symmetry of the system. Furthermore, density fluctuations propagate in all directions except in the one strictly transverse to the flow ( $q_x = 0$ ). In addition, the dispersion curve displays an axial symmetry with respect to the  $q_y$ -axis. It is worth noting that the sign of the associated phase velocity changes as  $q_x$  increases. The long wavelength excitations propagate

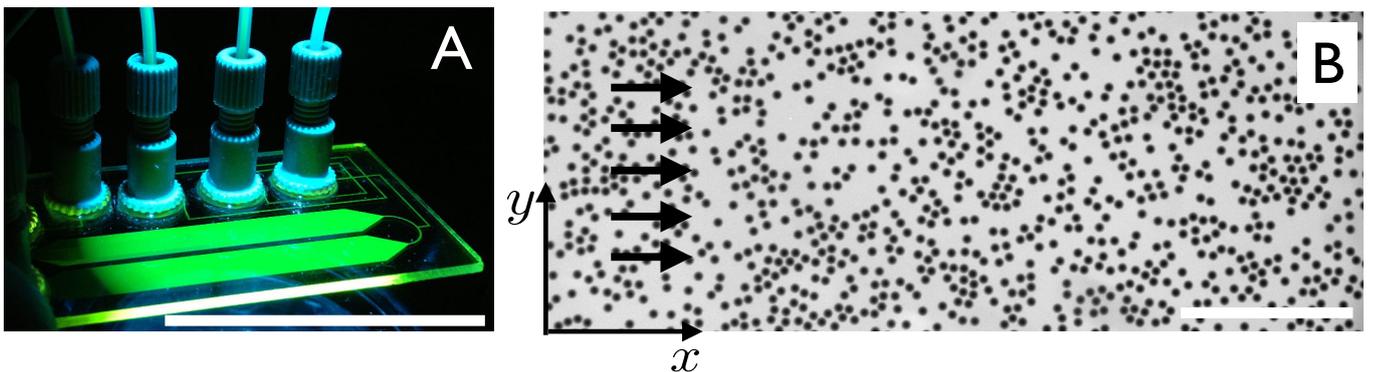


FIG. 1: (A): Picture of the microfluidic setup. During the experiments one of these two 5-cm long channels was continuously fed with monodisperse droplets. Scale bar: 5 cm. (B): Typical snapshot of an experimental movie. The black arrows indicate the direction of the flow. Scale bar:  $500 \mu\text{m}$ .

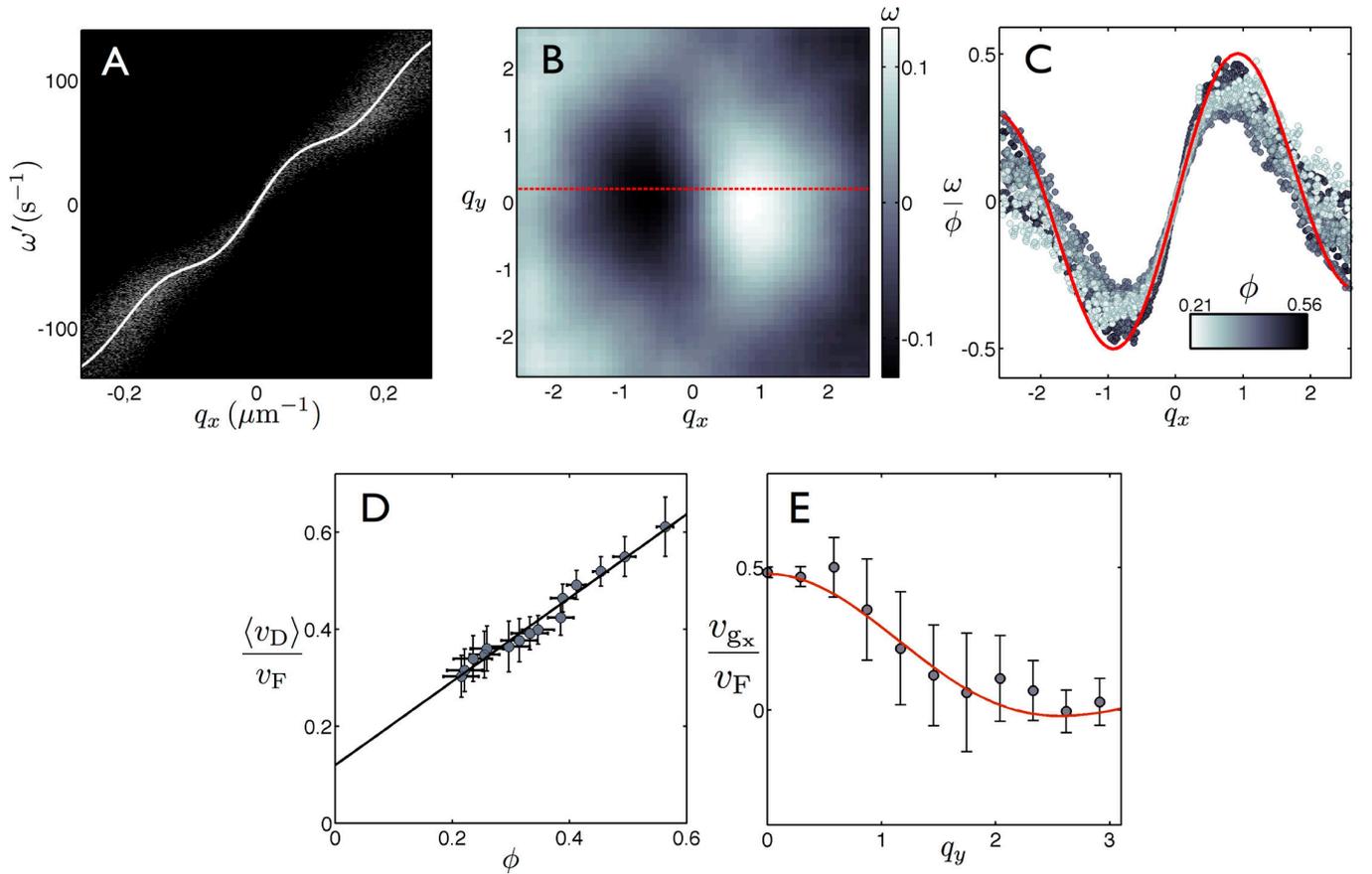


FIG. 2: (A): Grayscale power spectrum of the density fluctuations plotted in the  $(q_x, \omega')$  plane for  $q_y = 0.2/R_d$ ,  $\phi = 0.39$ , and  $v_F = 1$  mm/s. Solid line: theoretical prediction for the location of the dispersion curve. (B): Experimental dispersion curve  $\omega(q_x, q_y)$ ,  $\phi = 0.39$ . Recall that units are chosen so that  $R_d = 1$ , and  $v_F = 1$ . Given the size of the observation window, the smallest finite value for  $q$  is given by  $qW = 11.6$ . The dotted line indicates the  $q_y$  value corresponding to the power spectrum shown in A. (C): Renormalized dispersion relations in the moving frame,  $q_y = 0$ . Circles: experimental data, solid line: theoretical prediction, Eq. 6, with no adjustable parameter. (D): Variations of the mean droplet velocity with  $\phi$ . Circles: experimental data. Solid line: best linear fit. The error bars account for statistical fluctuations, and correspond to the standard deviation. (E):  $v_{gx}$  plotted versus  $q_y$  at  $q_x = 0$ . Circles: experimental data for  $\phi = 0.56$ . Solid line: Theoretical prediction with no adjustable parameter deduced from Eq. 6. The error bars correspond to a 95% confidence interval in the measurement of  $v_{gx}$  from the slope of the dispersion curve.

downstream, while the short wavelength excitations propagate upstream.

In Fig. 2C, we show that once renormalized by  $\phi$ , the dispersion relations corresponding to 12 different area fractions collapse on a single master curve. This noticeable collapse is not specific to the purely longitudinal waves and occurs for all the possible  $q_y$  values. Our systematic rescaling demonstrate that a unique set of physical mechanisms dictates the collective motion of the droplets, at all scales, regardless of the droplet density.

We now propose a theoretical model which quantitatively accounts for our experimental findings. The instantaneous configuration of the emulsion is fully determined by the positions of  $N$  identical axisymmetric particles:  $\mathbf{r}_i(t)$ ,  $i = 1 \dots N$ . The dynamics of an isolated particle has proven to be correctly captured by a constant mobility coefficient,  $\mu$ , defined as  $\dot{\mathbf{r}}_i(t) \equiv \mu \mathbf{v}(\mathbf{r}_i, t)$  where  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$  is the in-plane fluid velocity field averaged over the channel height in the absence of the particle  $i$  [15, 16]. In our quasi-2D geometry, the fluid flow is potential and derives from the local pressure field,  $\mathbf{v} = -G \nabla P$ , where  $G = h^2/12\eta$ ,  $\eta$  being the viscosity of the aqueous phase;  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$  is then fully determined when considering the incompressibility condition, and the no-flux boundary conditions through the sidewalls of the channel. In a particle-free channel, the velocity field would be uniform,  $\mathbf{v} = v_F \hat{\mathbf{x}}$ . The particles are not passive tracers ( $\mu < 1$ ), therefore their relative motion with respect to the fluid results in a dipolar disturbance of the surrounding flow [3, 4]. The potential dipolar perturbation,  $\mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i(t))$ , induced at the position  $\mathbf{r}$  by a particle

located at  $\mathbf{r}_i(t)$  is defined by the modified incompressibility relation

$$\nabla \cdot \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i(t)) = \sigma \partial_x \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t)), \quad (1)$$

where  $\sigma$  is the dipole strength ( $\sigma > 0$ ). In order to establish the equations of motion of the  $N$  particles, we now assume the dipolar disturbances to be pairwise additive. This yields  $\dot{\mathbf{r}}_i(t) = \mu v_F \hat{\mathbf{x}} + \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}_i(t), \mathbf{r}_j(t))$ . We now move from these  $N$  coupled equations to an hydrodynamic description for the particle density field  $\rho(\mathbf{r}, t)$ .  $\rho(\mathbf{r}, t)$  obeys the conservation equation

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = 0. \quad (2)$$

In order to relate the local particle current  $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$  to the local structure of the suspension, we used a conventional kinetic theory framework [20, 21]

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \mu \rho(\mathbf{r}, t) \mathbf{v}_F + \mu \int d\mathbf{r}' \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rho^{(2)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t), \quad (3)$$

where  $\rho^{(2)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$  is the two-point distribution function. We now assume that the particle positions decorrelate over a distance as small as one particle diameter. In addition to this mean-field approximation, we also explicitly account for the steric repulsion between the particles via the following closure relation for Eq. 3

$$\rho^{(2)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \begin{cases} 0 & \text{if } |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| < 2R_d, \\ \rho(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r}') & \text{if } |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \geq 2R_d, \end{cases} \quad (4)$$

where  $R_d$  is the radius of a particle. Eqs. 3 and 4 define the equations of motion for the particle-density field. In principle, the effective extent of the excluded volume could be larger than the particle radius due to short-range intermolecular repulsions, and lubrication forces. However no measurable difference with the actual droplet radius could be observed in our experiments. We now focus on the dynamics of small density fluctuations,  $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t)$ , around an homogeneous state:  $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) \equiv \rho(\mathbf{r}, t) - \rho_0$ , where  $\rho_0 = \langle \rho(\mathbf{r}, t) \rangle = \phi / (\pi R_d^2)$ . As done in our experiments, we work in the frame moving at the mean droplet velocity  $\langle \mathbf{v}_d \rangle = \mu v_F \hat{\mathbf{x}} + \mu \rho_0 \int_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| \geq 2R_d} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') d\mathbf{r}'$ . At leading order in  $\tilde{\rho}$ , and combining Eq. 3 and Eq. 4 ansatz, the current functional that captures both the hydrodynamic interactions (long-range) and the contact interactions (short-range) remains non-local:  $\tilde{\mathbf{j}}(\mathbf{r}, t) \equiv \mu \rho_0 \int_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| \geq 2R_d} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \tilde{\rho}(\mathbf{r}', t) d\mathbf{r}'$ . However, using Eq. 1 and focusing on particles far from the sidewalls, then  $\nabla \cdot \tilde{\mathbf{j}}$  takes a simple local form

$$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{j}}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\mu \rho_0 \sigma}{4\pi R_d} \int_0^{2\pi} \tilde{\rho}(\mathbf{r} - 2R_d \hat{\mathbf{r}}') \cos \theta' d\theta', \quad (5)$$

where, since  $R_d \ll W$ , we have used the expression of the dipolar perturbation corresponding to an unbounded domain [4],  $\mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r} + 2R_d \hat{\mathbf{r}}') \cdot \hat{\mathbf{r}}' = -(\sigma \cos \theta') / 8\pi R_d^2$ , with  $\hat{\mathbf{r}}' \equiv \cos \theta' \hat{\mathbf{x}} + \sin \theta' \hat{\mathbf{y}}$ . We now look for plane wave solutions  $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} \tilde{\rho}_{\mathbf{q}} \exp(i\omega t - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r})$  of Eq. 2. After some elementary algebra we infer their dispersion relation, which is our main theoretical result

$$\omega = (\mu \sigma \rho_0) q_x \frac{J_1(2qR_d)}{2qR_d}, \quad (6)$$

where  $J_1$  is the first Bessel function. As  $\omega$  is real, this relation implies that density waves freely propagate in the channel in qualitative agreement with our experimental observations. It is worth noting that since  $\nabla \cdot \tilde{\mathbf{j}}$  is a local quantity, the form of the dispersion relation is generic, and does *not* depend on the channel size, and geometry. In addition, the linear variations of  $\omega$  with  $\rho_0$  explain the collapse of the normalized dispersion relations on a single master curve over the entire range of wave vectors (Fig. 2C). We now move to a quantitative comparison between our theoretical predictions and our experimental measurements. Eq. 6 is fully determined by two physical parameters: the droplet radius  $R_d$ , and  $\mu \sigma \rho_0$  that quantifies the strength of the hydrodynamic couplings. In order to determine this latter parameter, we exploit another specific feature of the hydrodynamic interactions. Due to their symmetry, the sum of all the dipolar perturbations would leave the mean droplet velocity unchanged in an isotropic and homogeneous system. However, in anisotropic-channel geometries,  $\langle \mathbf{v}_d \rangle$  increases linearly with the mean density irrespective of the channel size [11]. At 0<sup>th</sup> order in  $\tilde{\rho}$ ,  $\langle \mathbf{v}_d \rangle = \mu v_F \hat{\mathbf{x}} + \frac{1}{2} (\mu \sigma \rho_0) \hat{\mathbf{x}}$ . Importantly this relation provides a direct means to measure independently the last unknown parameter of our theory. The linear increase of the measured value of  $\langle v_D \rangle$  with  $\rho_0$  appears clearly in Fig. 2D. The strength of the hydrodynamic coupling ( $\mu \sigma \rho_0$ ) can thus be inferred from a linear fit (see Fig. 2D). We superimposed our theoretical predictions for the dispersion relation, Eq. 6, both

in the laboratory frame and in the frame moving at  $\langle \mathbf{v}_d \rangle$  in Figs. 2A and 2C. We find that the agreement between the theory and the experiments is excellent over a wide range of wave vectors, and of area fractions. Without any free fitting parameters, our model quantitatively captures the dispersive nature of the density fluctuations observed in the flowing emulsions.

To gain additional physical insight into the propagation of the density waves, it is worth looking at the small- $q$  expansion of Eq. 6:  $\omega = \frac{1}{2}\mu\sigma\rho_0q_x[1 - \frac{1}{2}(qR_d)^2] + \mathcal{O}((qR_d)^4)$ . At leading order, this relation is non-dispersive (linear) for the wave component parallel to the mean flow. The phase velocity scales linearly with the magnitude of the dipolar coupling  $\sigma$ . In addition, it does not depend explicitly on  $R_d$ , which implies that the small- $q$  excitations propagate only due to the long-range hydrodynamic interactions between the particles. Conversely, the dispersive term in  $\omega(\mathbf{q})$  explicitly depends on the particle radius. At high  $q$ , the propagation of the density waves is set by the combination of the excluded volume interactions and the angular symmetry of the hydrodynamic couplings. To introduce our last quantitative results, we recall that one of the most striking feature observed in the flowing emulsions is the propagation of vertical density bands which propagate at a significantly faster speed than the mean droplet flow, see supplemental movie [26]. An homogeneous vertical band spanning the entire width of the channel corresponds to the linear superposition of plane waves associated with  $q_y = 0$ , and with  $q_x$ 's distributed around  $q_x = 0$ . In the frame moving at  $\langle \mathbf{v}_d \rangle$ , their speed is given by the  $x$ -component of the group velocity  $v_{g_x}(q_x, q_y) = \partial\omega/\partial q_x$  evaluated at  $q = 0$ . In Fig. 2E, we plot the experimental values of  $v_{g_x}(0, q_y)$ , which we measured from the slope at the origin of the dispersion curves (as the ones shown in Fig. 2C). Again the agreement with the theoretical curve deduced from Eq. 6 is excellent. This plot reveals that the density bands extended across the entire channel width are the fastest and propagate at velocities 1.5 higher than the mean droplet flow, thereby making them highly visible on the experimental movies.

To close this letter we further stress on the relevance of our results to a much broader range of physical systems. Two ingredients dictate the collective behavior of the confined emulsions: (i) the hydrodynamic interactions between the particles result from dipolar perturbations to the mean flow, (ii) the particles have a finite size. As it turns out these two features are shared by a number of very distinct hydrodynamic systems. A first class of example concern the transport of particles in porous media. Regardless of the spatial dimension (2D or 3D), the fluid flow in a porous network is a potential flow at scales larger than the typical pore size. In addition, it has been recently shown that when particles locally obstruct the porous network they induce a dipolar perturbation to the velocity field [18]. Therefore, the dispersive propagation of density excitations is expected to be found in particle filters, blood micro-vessels, soils, etc. It is also worth noting that the dipolar perturbations to the flow found in Hele-Shaw and in network geometries are not restricted to particles advected by the surrounding fluid. Sedimenting particles, rising bubbles and even self-propelled particles would move faster than the (confined) host fluid, thereby inducing dipolar perturbations in the far field as well. The same collective phenomenology would be found except that the speed of the density waves should have the opposite signs, and that the mean particle velocity should decay with the volume fraction. As a last example, we point that particles diffusio-phoretically transported by an homogeneous solute gradient [22] should also display a very similar propagative dynamics, as they also induce a weak far field disturbance that has a dipolar symmetry [23]. This last example makes it clear that confinement is not a requirement to observe the propagation of dispersive waves. The model microfluidic experiment that we characterized and described in a quantitative fashion should be seen as a proxy to probe generic collective effects in particle-laden fluids driven out of equilibrium.

We acknowledge stimulating interactions with C. Savoie and M. Guérard. We thank D. Saintillan and T. Beatus for valuable comments and discussions, and Bertrand Levaché for help with the experiments. We also acknowledge funding from the National Science Foundation (grant to CBET-0746285 to EL)

- 
- [1] E. Guazzelli and J. Hinch, Annual Review of Fluid Mechanics 43, 97 (2011).
  - [2] S. Ramaswamy, Adv. Phys. 50, 297 (2001).
  - [3] E. Evans and E. Sackmann, J. Fluid Mech. 194, 553 (1988).
  - [4] B. X. Cui, H. Diamant, B.H. Lin, and S. A. Rice, Phys. Rev. Lett. 92, 258301 (2004).
  - [5] J. Blawdziewicz and E. Wajnryb, Physics of Fluids, 20, 093303 (2008).
  - [6] R. Di Leonardo, E. Cammarota, G. Bolognesi, H. Schafer, and M. Steinhart, Phy. Rev. Lett. 107, 044501 (2011).
  - [7] J.-P. Hulin, A.-M. Cazabat, E. Guyon, and F. Carmona, *Hydrodynamics of Dispersed Media*, Elsevier, (1990).
  - [8] R. D. Deegan, O. Bakajin, T. F. Dupont, G. Huber, S. R. Nagel, and T. A. Witten, Nature 389, 827-829 (1997).
  - [9] R. D. Deegan, O. Bakajin, T. F. Dupont, G. Huber, S. R. Nagel, and T. A. Witten, Phys. Rev. E 62, 756 - 765 (2000).
  - [10] R. Seemann, M. Brinkmann, T. Pfohl, and S. Herminghaus, Rep. Prog. Phys. 75, 016601(2012).
  - [11] T. Beatus, R. Bar-Ziv, and T. Plusty, Physics Reports, 516(3), 103-145 (2012).

- [12] A. S. Popel, and P. C. Johnson, *Annual Review of Fluid Mechanics* 37, 43 (2005).
- [13] H. P. Zhang, A. Beer, E.-L. Florin, and H. L. Swinney, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* , 107(31), 1362630 (2010).
- [14] R. Zhang, L. Turner, and H. C. Berg, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* , 107(1), 28890 (2010).
- [15] T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv, *Phys. Rev. Lett.* 103, 114502 (2009).
- [16] T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv, *Nature Physics* 2, 743 - 748 (2006).
- [17] F. Rouyer, D. Lhuillier, J. Martin, and D. Salin, *Phys. Fluids* 12, 958 (2000).
- [18] N. Champagne, R. Vasseur, A. Montourcy, and D. Bartolo, *Phys. Rev. Lett.* 105, 044502 (2010).
- [19] S. Thutupalli, R. Seemann, and S. Herminghaus, *New J. Phys.* 13, 073021 (2011).
- [20] H. Risken, *The Fokker-Planck Equation: Methods of Solution and Applications*, Springer Verlag, Berlin (1996).
- [21] A.M. Menzel, *Phys. Rev. E* 85, 021912 (2012).
- [22] J. Palacci, C. Cottin-Bizonne, C. Ybert, and L. Bocquet, *Soft Matter* 8, 980 (2012).
- [23] J. L. Anderson, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 21, 61 (1989).
- [24] S. J. Ebbens and J. R. Howse, *Soft Matter* 6, 726-738 (2010).
- [25] See Supplemental Material for more details about the experiments and the data analysis.
- [26] See Supplemental Material for a typical movie of a flowing microfluidic emulsion.

### 3.3 Perspectives

Dans cet article, on s'intéresse à la dynamique des fluctuations de densité en linéarisant l'équation d'évolution du champ de densité, et donc en ne considérant que des fluctuations de faible amplitude devant la densité moyenne. Quand on observe les films des expériences, on constate que les fluctuations de densité peuvent être relativement importantes. Il est remarquable que les résultats présentés dans l'article permettent de comprendre de manière au moins qualitative les aspects les plus visuels de la dynamique. Néanmoins, la dynamique de l'émulsion fait certainement intervenir des mécanismes non-linéaires. Une caractérisation expérimentale de ces effets non-linéaires reste à produire. Par ailleurs, les fluctuations de densité sont bien sûr reliées à des fluctuations des vitesses des particules. Un travail récent de l'équipe de R. Bar-Ziv, publié en 2013, étend notre analyse de la dynamique d'une émulsion advectionnée en milieu confiné en s'intéressant cette fois aux fluctuations de vitesse des particules [30].

Dans notre étude, on s'est intéressé à la dynamique au sein de l'émulsion en se plaçant loin des bords. Une étude de la dynamique de clusters de taille finie serait intéressante. La modélisation de tels systèmes pose problème puisque la discontinuité de densité au niveau des bords ne permet pas de linéariser les équations.

Aussi, comme mentionné à la fin de l'article, les résultats expérimentaux et théoriques présentés dans ce chapitre ont en fait une portée qui s'étend au delà des suspensions advectionnées dans des cellules de Hele-Shaw. En effet, les ingrédients à l'origine de la dynamique propagative dans ce système dissipatif hors-équilibre sont :

- un couplage hydrodynamique entre les particules de forme dipolaire
- les particules ont une taille non-nulle

On retrouve ces ingrédients dans les milieux poreux, qu'ils soient 2D ou 3D. En effet, l'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux obéit à la loi de Darcy qui relie de manière linéaire la vitesse de l'écoulement au gradient de pression :

$$\mathbf{v} = -\frac{K}{\eta} \nabla P \quad (3.13)$$

où  $K$  est la perméabilité du milieu poreux et  $\eta$  la viscosité du fluide. Dans le cas d'un écoulement incompressible, le potentiel du champ de vitesse,  $\Phi = -\frac{K}{\eta} P$ , obéit à l'équation de Laplace,  $\nabla^2 \Phi = 0$ . Des particules transportées par le fluide au sein du milieu poreux pourront avoir localement une vitesse plus faible que le fluide porteur à cause de la friction avec les obstacles ou d'effets d'encombrement. Les perturbations à l'écoulement générées par ces particules auront la même symétrie dipolaire que celle dans une cellule de Hele-Shaw [22]. On s'attend donc à observer la propagation d'ondes de densité au sein de suspensions advectionnées ou en sédimentation dans des milieux poreux. L'équation Eq. 3.13 est bien sûr valide à condition d'étudier le système sur une échelle au delà de laquelle il peut être considéré comme homogène. Cette échelle est donnée typiquement par la longueur de corrélation du

désordre du milieu,  $\xi$ . Entre la taille d'un pore et la longueur  $\xi$ , le milieu peut toujours être considéré comme continu mais il devient hétérogène. Or, le désordre a un effet sur la propagation des ondes linéaires. Dans les systèmes 1D, il empêche tout simplement la propagation des ondes. Dans les systèmes 2D, au delà d'une amplitude critique, le désordre localise les ondes linéaires (localisation d'Anderson). Dans ce contexte, il serait très intéressant d'étudier l'impact du désordre géométrique sur la propagation des excitations de densité, et de vitesse, dans des suspensions forcées hors-équilibre. L'impact du désordre sur les ondes de choc, lui, reste une question complètement ouverte. Il n'existe pas de résultat générique sur l'influence du désordre sur la propagation d'ondes non-linéaires.

Enfin, notons que la démarche adoptée dans ce chapitre de s'intéresser aux fluctuations de densité en linéarisant l'équation de conservation de la masse et en utilisant une approche de type champ moyen peut être adaptée à des problèmes où les interactions hydrodynamiques ont une symétrie différente. Les seules nécessités sont que les interactions doivent être additives de paire et qu'elles découlent d'un potentiel (perturbations à l'écoulement de divergence nulle). Ainsi, il est possible d'obtenir une relation de dispersion des fluctuations de densité dans le cas du fameux problème de la sédimentation 3D. Dans un fluide 3D au repos, une particule en mouvement engendre un écoulement. En champ lointain, la contribution principale au champ de vitesse de l'écoulement perturbatif décroît en  $1/r$  (la particule est vue comme une source ponctuelle de moment pour le fluide, on appelle cela un Stokeslet). Le fait que la particule de taille finie déplace un certain volume de fluide crée également une perturbation qui décroît en  $1/r^3$  (contrairement au cas confiné où cette contribution décroît en  $1/r^2$ ). Si on ne prend en compte que la perturbation en  $1/r$ , on obtient par un calcul similaire à celui présenté dans l'article la relation de dispersion suivante pour les ondes de densité dans une suspension monodisperse en sédimentation sous l'effet de la gravité selon la direction  $z$  :

$$\omega = q\langle v \rangle \cos \theta_q + \frac{4mgR_d}{3\eta} (qR_d) \left[ 1 - \frac{2}{5}(qR_d)^2 + \mathcal{O}((qR_d)^4) \right] \cos \theta_q \quad (3.14)$$

où  $\langle v \rangle$  est la vitesse moyenne de sédimentation,  $\theta_q$  est l'angle du vecteur d'onde par rapport à la direction  $z$ ,  $m$  est la masse des particules,  $g$  est l'accélération de la pesanteur,  $\eta$  est la viscosité du liquide et  $R_d$  est le rayon des particules. On remarque que si l'on prend  $R_d \rightarrow 0$ , on obtient  $\omega \rightarrow q_z \langle v \rangle$  qui découle de la simple advection des particules à la vitesse moyenne. Dans le cas de la sédimentation, les effets propagatifs sont une conséquence du volume exclu même à grandes longueurs d'onde (contrairement au cas confiné). Notons que les effets des interactions qui décroissent en  $1/r^3$  peuvent être facilement inclus dans les calculs. Alors que la question des fluctuations de vitesse au sein des systèmes en sédimentation reste ouverte (quel mécanisme fixe la longueur de corrélation des fluctuations de vitesse qui est de l'ordre de la vingtaine de distances inter-particules?), nous avons ici un résultat très quantitatif sur la dynamique spatio-temporelle d'un système en sédimentation. Il serait intéressant de comparer cette prédiction avec des résultats expérimentaux.

## 3.4 Annexe

### 3.4.1 Écoulement potentiel dans une cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw est un canal fluide constitué de deux plaques parallèles séparées par une distance  $h$  très faible devant les dimensions des plaques dans le plan de l'écoulement. Dans cette annexe, on montre que le champ de vitesse du fluide moyenné sur la hauteur du canal dérive d'un potentiel. Soit  $z$  la direction de la hauteur du canal et  $(x, y)$  le plan de l'écoulement (Fig. 3.3). Puisqu'on considère des écoulements incompressibles, l'équation de conservation de la masse s'écrit :

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (3.15)$$

Par définition, les échelles de longueur de la cellule dans la direction  $z$  sont très faibles devant celles dans le plan  $(x, y)$ ,  $h \ll L$ , où  $L$  est la dimension typique de la cellule dans le plan de l'écoulement. En ordre de grandeur, l'équation de conservation de la masse nous dit que la vitesse du fluide dans la direction  $z$  est très petite devant celle dans le plan  $(x, y)$  :

$$v_z \approx \frac{h}{L} v_{x(y)} \ll v_{x(y)} \quad (3.16)$$

Dans ce qui suit, on néglige la composante de l'écoulement dans la direction  $z$  (on pose  $v_z = 0$ ). Avec des arguments de type ordre de grandeur comme ceux utilisés ci-dessus, on montre facilement que le terme convectif dans l'équation de Navier-Stokes peut être négligé devant le terme diffusif à condition que :

$$Re \approx \frac{v_{x(y)} L}{\nu} \ll \frac{L^2}{h^2} \quad (3.17)$$

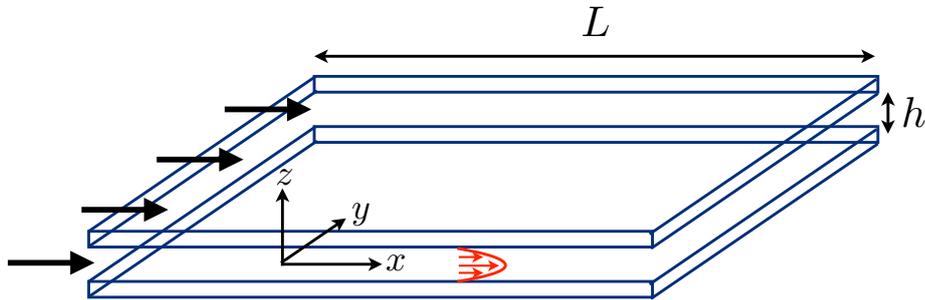


FIGURE 3.3: Schéma d'une cellule de Hele-Shaw constituée de deux plaques parallèles séparées d'une distance  $h$ . Les échelles de longueur dans le plan  $(x, y)$  sont très grandes devant la hauteur du dispositif,  $L \gg h$ . Le profil parabolique de la composante suivant  $x$  de l'écoulement (dans la direction  $x$ ) est représenté en rouge.

où  $\nu$  est la viscosité cinématique du fluide. Comme  $h \ll L$  cette condition est vérifiée très facilement, sauf si le fluide est très peu visqueux et que les débits imposés sont très importants, ce qui n'est pas notre cas. En régime stationnaire, l'équation qui régit l'écoulement est donc l'équation de Stokes :

$$\eta \Delta \mathbf{v} = \nabla P \quad (3.18)$$

où  $\eta$  est la viscosité dynamique du fluide et  $P$  le champ de pression. Dans le laplacien, les arguments sur les échelles de longueur du système permettent de négliger certains termes :

$$\frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial x^2} \ll \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial z^2} \quad \text{et} \quad \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial y^2} \ll \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial z^2} \quad (3.19)$$

L'équation de Stokes se résume alors à :

$$\eta \frac{\partial^2 \mathbf{v}_{\parallel}}{\partial z^2} = \nabla_{\parallel} P \quad (3.20)$$

et

$$\frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad (3.21)$$

L'équation Eq. 3.21 montre que la pression ne dépend pas de  $z$ . En intégrant l'équation Eq. 3.20 par rapport à  $z$ , on obtient une expression du champ de vitesse dans le plan de l'écoulement :

$$\mathbf{v}_{\parallel}(x, y, z) = \frac{z^2 \nabla_{\parallel} P}{2\eta} + \mathbf{A} z + \mathbf{B} \quad (3.22)$$

où  $\mathbf{A}$  et  $\mathbf{B}$  sont des constantes vectorielles à déterminer à l'aide des conditions aux limites. En imposant les conditions de non-glissement sur les plaques,  $\mathbf{v}_{\parallel}(x, y, z = \pm h/2) = \mathbf{0}$ , on trouve immédiatement  $\mathbf{A} = 0$  et  $\mathbf{B} = -h^2 \nabla P / (8\eta)$ . Finalement le champ de vitesse dans la cellule s'écrit :

$$\mathbf{v}_{\parallel}(x, y, z) = \frac{h^2}{8\eta} \left[ \left( \frac{z}{(h/2)} \right)^2 - 1 \right] \nabla_{\parallel} P \quad (3.23)$$

Si on s'intéresse maintenant au champ de vitesse moyenné sur la hauteur du canal, son expression est :

$$\langle \mathbf{v}_{\parallel}(x, y) \rangle_h = -\frac{h^2}{12\eta} \nabla_{\parallel} P \quad (3.24)$$

La vitesse moyennée sur la hauteur du canal découle donc du potentiel  $\Phi = -\frac{h^2}{12\eta} P$ .



## Stabilité et fluctuations de cristaux hydrodynamiques confinés

Dans le chapitre précédent, on s'est intéressé à la dynamique de suspensions advectées dans une géométrie confinée. Le bon accord entre les résultats théoriques et les mesures expérimentales a permis de montrer la pertinence de notre description des interactions hydrodynamiques entre les particules. Dans ce chapitre, on étend notre étude aux cas de suspensions ordonnées où les particules occupent initialement les noeuds d'un réseau cristallin (réseau de Bravais). En particulier, on s'intéresse à la stabilité structurelle et orientationnelle de ces cristaux. J'ai réalisé cette étude au tout début de ma thèse, lors d'un séjour d'un mois à l'université de Californie, San Diego, dans l'équipe d'Eric Lauga. Cette étude fait le lien avec la seconde partie du manuscrit puisqu'on introduit ici la notion de particule active et qu'on étudie également la stabilité de cristaux constitués de telles particules.

Dans un travail publié en 1997, R. Lahiri et al. introduisent un modèle phénoménologique continu pour étudier la dynamique de cristaux se déplaçant dans des milieux dissipatifs [25]. Ils prédisent que ces cristaux sont linéairement instables. Dans ce chapitre, je montre de manière systématique, à l'aide d'un modèle microscopique, que les cristaux de particules passives sont toujours linéairement stables. Pour les cristaux de particules actives, la stabilité dépend de la symétrie du réseau ainsi que de la fraction surfacique en particules. Le travail présenté ici est théorique. Néanmoins, il répond à des problématiques expérimentales. En effet, comme on l'a vu dans l'introduction, les progrès récents en microfluidique permettent déjà la réalisation de suspensions ordonnées constituées d'un grand nombre de particules. L'utilisation de telles suspensions pour des applications de type laboratoire sur puce nécessite de connaître l'impact des interactions hydrodynamiques sur

leur dynamique. Dans ce chapitre, je commence par introduire le modèle utilisé pour décrire la dynamique des cristaux passifs et actifs. Ensuite, je présente les principaux résultats sur la stabilité de ces cristaux sans entrer dans le détail des calculs. Les limitations du modèle sont également discutées. Dans la section suivante, je discute quelques perspectives expérimentales, et notamment mon travail sur des suspensions ordonnées réalisées à l'aide d'un montage de synthèse de particules *in situ* par lithographie optique. Enfin, je reproduis l'article "Active and driven hydrodynamic crystals" (Desreumaux et al., EPJE 35 :68, 2012) où les résultats et les calculs sont exposés de manière exhaustive.

## 4.1 Modélisation de la dynamique de cristaux hydrodynamiques formés de particules passives ou actives

### 4.1.1 Modélisation des interactions hydrodynamiques

Au chapitre précédent, nous avons introduit les interactions hydrodynamiques entre particules advectées par un fluide porteur dans une géométrie confinée. Dans cette section, je reviens brièvement sur ces interactions avec une perspective différente. On part ici du cas non confiné et on regarde ce que change l'introduction du confinement dans une direction. De même, on introduit les interactions hydrodynamiques entre particules actives en comparant le cas tridimensionnel et le cas bidimensionnel.

#### 4.1.1.1 Écoulement engendré par une particule passive entraînée par une force extérieure dans un fluide au repos en géométrie confinée

Considérons tout d'abord une particule dans un fluide 3D non borné. En gardant à l'esprit que le système qui nous intéresse au final est bidimensionnel, on suppose que la particule a la même densité que le fluide et qu'elle ne sédimente pas. On se place par ailleurs dans le régime de Stokes où les termes inertiels sont négligeables devant les termes advectifs (ce sera presque toujours le cas en géométrie quasi-2D). On imagine que le fluide est au repos et qu'une force extérieure  $\mathbf{F}$  est appliquée à la particule pour la mettre en mouvement. Puisque l'inertie de la particule est négligeable, sa vitesse est fixée par l'équilibre entre la force extérieure et la force de traînée qui s'oppose à son mouvement. Si la particule subit une force de traînée de la part du fluide, cela veut dire qu'elle exerce par réaction une force opposée sur le fluide. En champ lointain, c'est à dire à une distance grande devant la taille de la particule,  $\mathbf{r} \gg b$  où  $b$  est une dimension typique de la particule, la particule peut être vue comme une source ponctuelle d'impulsion (en hydrodynamique, on appelle cela un Stokeslet) pour le fluide [65]. Puisque dans le cas 3D, l'impulsion est conservée (pas de friction), le flux de quantité de mouvement à travers une sphère de rayon  $r$  centrée sur la particule, qui varie comme  $\rho v^2 r^2$ , doit être le même quel que soit  $r$ . Cela implique que l'écoulement engendré par la source ponctuelle d'impulsion décroît en  $1/r$ . La forme

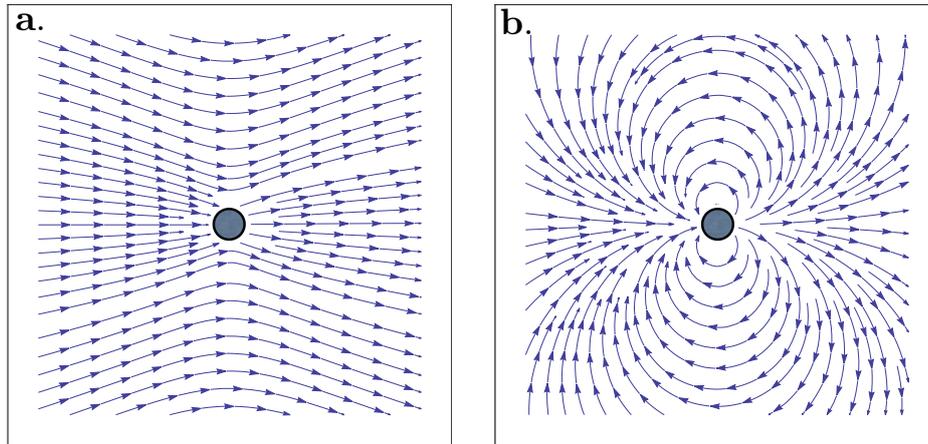


FIGURE 4.1: **a.** Lignes de courant de la perturbation à l'écoulement engendrée par un Stokeslet (coupe dans le plan de la force appliquée à la particule). **b.** Lignes de courant de la perturbation à l'écoulement engendrée par un dipôle source-puits.

exacte de l'écoulement engendré par une source ponctuelle d'impulsion est donnée par la fonction de Green de l'équation de Stokes (cf. Eq. 3.18). Cet écoulement est représenté sur la figure Fig. 4.1 a. En plus de fournir de la quantité de mouvement au liquide, la particule en mouvement déplace du fluide du fait de sa taille finie. Puisque du fluide n'est ni créé ni détruit au niveau de la particule, celle-ci peut être vue en champ lointain comme un dipôle source-puits [65]. Une source de masse crée un écoulement qui décroît en  $1/r^2$  (cf. conservation du flux de masse). Un dipôle source-puits crée donc un écoulement qui décroît en  $1/r^3$ . Dans le cas 3D, la composante dominante à l'écoulement en champ lointain est celle du monopôle de force (Stokeslet) qui décroît en  $1/r$ . Voyons maintenant ce que change l'introduction du confinement dans une direction. Considérons une particule entraînée par une force extérieure (électrostatique, magnétique, ...) dans un fluide confiné entre deux plaques parallèles séparées par une distance comparable à la taille de la particule. On suppose que la direction de la force est parallèle au plan du dispositif. Du fait de la présence des parois, la particule subit en plus de la force extérieure une force de friction. La vitesse de la particule isolée est donc fixée par l'équilibre entre la force extérieure et la force de friction. Comme dans le cas 3D, la particule perturbe à la fois la distribution de quantité de mouvement du fluide mais aussi sa distribution de masse. La contribution de la particule à la quantité de mouvement du fluide, en champ lointain, est celle d'une source ponctuelle (Stokeslet). Mais ici, contrairement au cas 3D, l'impulsion du fluide n'est pas conservée à cause de la friction avec les parois. Un calcul par la méthode des images (similaire à celle utilisée en électrostatique) permet de prendre en compte les conditions aux limites au niveau des parois [16]. Le calcul montre que la perturbation à l'écoulement en champ lointain générée par une force ponctuelle entre deux plaques décroît en  $1/r^2$  (contrairement à  $1/r$  en 3D).

De plus, l'écoulement engendré a la même symétrie que celle d'un dipôle source-puits [16] (Fig. 4.1 b.). Comme dans le cas 3D, on doit également prendre en compte le déplacement de masse du fluide par la particule de taille finie. En champ lointain, la particule peut être vue à l'ordre dominant en  $b/r$  comme un dipôle source-puits. L'écoulement généré par un dipôle source-puits à deux dimensions décroît en  $1/r^2$  (puisque l'écoulement généré par une source ou un puits décroît en  $1/r$  pour que le flux de masse à travers un cercle ne dépende pas du rayon du cercle). Dans le cas 2D, les contributions du Stokeslet et du dipôle source-puits ont donc la même décroissance en  $1/r^2$  et la même symétrie. Pour ces deux contributions, on peut montrer que la force du dipôle est proportionnelle à la vitesse de la particule. Au final, on peut écrire la perturbation au champ de vitesse du fluide en champ lointain par une particule située à l'origine comme :

$$\mathbf{v}^d(\mathbf{r}) = \frac{\sigma}{2\pi r^2} (2\hat{\mathbf{r}}\hat{\mathbf{r}} - \mathbb{I}) \cdot \hat{\mathbf{x}} \quad (4.1)$$

où  $\hat{\mathbf{x}}$  est la direction de la force extérieure. La force du dipôle,  $\sigma$ , prend en compte les deux contributions détaillées ci-dessus. Elle est proportionnelle à la vitesse de la particule isolée,  $\mathbf{U}_0$ , avec un coefficient de proportionnalité qui dépend de paramètres physiques et géométriques tels que la viscosité du fluide, la hauteur du canal, la taille de la particule, ... Notons que l'orientation du dipôle est fixée par la direction de la force extérieure.

#### 4.1.1.2 Ecoulement engendré par un nageur dans un fluide au repos en géométrie confinée

Considérons maintenant le cas d'une particule auto-propulsée qui se déplace avec une vitesse  $\mathbf{U}_0$  dans un fluide non borné (3D) au repos. Pour se propulser, la particule doit exercer une force de propulsion  $\mathbf{F}_p$  sur le fluide. En se déplaçant, la particule exerce également une force de traînée  $\mathbf{F}_d$  sur le fluide. Puisqu'aucune force extérieure n'est exercée sur la particule et qu'en régime visqueux l'inertie du nageur peut être négligée, l'intégrale des contraintes sur la surface de la particule est nulle. Cela ne veut bien sûr pas dire que la contrainte est nulle en tout point à la surface, mais à l'ordre le plus bas, la distribution de force est dipolaire. A une distance grande devant sa taille, le nageur peut être considéré, du point de vue du fluide, comme un dipôle de force [66]. Puisqu'en 3D un monopôle de force (Stokeslet) engendre un écoulement qui décroît en  $1/r$ , l'écoulement généré par le dipôle de force décroît lui en  $1/r^2$ . A trois dimensions, cette contribution est dominante devant celle du dipôle source-puits due au déplacement de masse de fluide par le nageur qui elle décroît en  $1/r^3$  (cf. paragraphe précédent). Notons que l'orientation du dipôle de force exercé par le nageur sur le fluide dépend du mécanisme de propulsion (Fig. 4.2). On distingue généralement deux grandes classes de nageurs : les "pullers" qui tirent le fluide devant eux et l'évacuent sur leurs côtés et les "pushers" qui propulsent vers l'arrière du fluide ramené des côtés. Comme dans le cas des particules passives, regardons maintenant comment est modifié l'écoulement par l'introduction du confinement dans une direction. On a vu qu'un

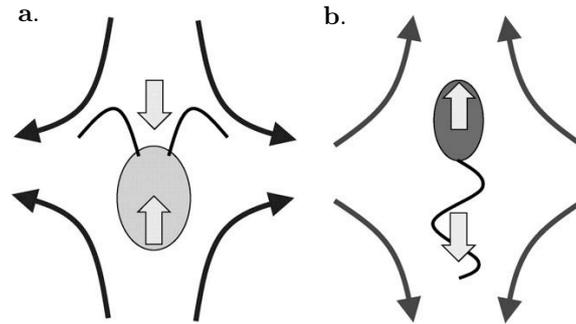


FIGURE 4.2: Figure extraite de [67]. **a.** Nageur de type "puller". **b.** Nageur de type "pusher". Les flèches grises indiquent les forces de propulsion et de traînée. Les flèches noires représentent les lignes de courant de l'écoulement induit.

Stokeslet en géométrie quasi-2D engendre un écoulement dipolaire qui décroît en  $1/r^2$ . Un dipôle de force (doublet de Stokeslet) génère donc en milieu confiné un écoulement qui en champ lointain décroît en  $1/r^3$ . Dans le paragraphe précédent, on a vu également qu'un dipôle source-puits en milieu confiné engendre lui un écoulement dipolaire qui décroît en  $1/r^2$ . Dans le cas bidimensionnel, l'écoulement en champ lointain généré par le nageur est donc dominé par la contribution du dipôle source-puits. Il est important de noter que l'orientation de ce dipôle est indépendante du mécanisme de propulsion. A 2D, on peut donc étudier les nageurs sans distinguer leur mode de propulsion. Au final, on peut écrire l'écoulement engendré par un nageur en milieu confiné comme :

$$\mathbf{v}^s(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}) = \frac{\sigma}{2\pi r^2} (2\hat{\mathbf{r}}\hat{\mathbf{r}} - \mathbb{I}) \cdot \hat{\mathbf{p}} \quad (4.2)$$

où  $\hat{\mathbf{p}}$  est le vecteur unitaire dans la direction de nage de la particule. La force du dipôle,  $\sigma$ , est proportionnelle à la vitesse du nageur,  $\mathbf{U}_0$ . Le coefficient de proportionnalité dépend de la taille et de la forme du nageur. Pour résumer, dans un fluide au repos en géométrie confinée, une particule entraînée par une force extérieure ou un nageur se propulsant lui-même génèrent tous les deux un écoulement de type dipolaire, qui décroît en  $1/r^2$ . Notons tout de même une différence importante : pour la particule entraînée par une force extérieure, l'orientation du champ dipolaire est fixe et est donnée par la direction de la force ; pour une particule auto-propulsée, l'orientation de la perturbation est donnée par la direction de nage de la particule (Fig. 4.3).

#### 4.1.1.3 Interactions hydrodynamiques

Nous venons de voir qu'une particule isolée, qu'elle soit passive et entraînée par une force, ou auto-propulsée, génère en milieu confiné un écoulement perturbatif de type dipolaire. Si plusieurs particules sont présentes, chacune d'elles va ressentir les perturbations créées par les autres. Comme au chapitre précédent, on suppose que les perturbations sont

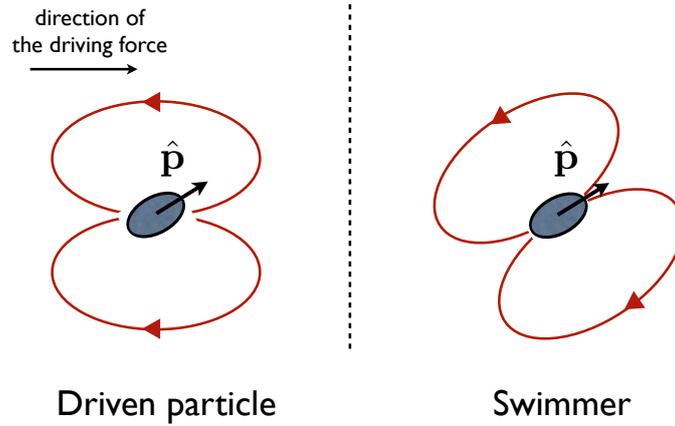


FIGURE 4.3: Schéma de l'écoulement dipolaire engendré par une particule passive (à gauche) et une particule active (à droite). Contrairement au cas passif où la direction du dipôle est fixée par la force extérieure, l'orientation de la perturbation dans le cas d'une particule active est donnée par l'orientation de la particule.

additives de paires (ce n'est qu'une approximation, en théorie, il faudrait résoudre l'équation de Laplace avec toutes les conditions aux limites aux surfaces des particules simultanément) puisqu'on se limite à l'étude de systèmes dilués. Pour la particule  $i$  de position  $\mathbf{R}_i$ , l'équation d'évolution de sa position est :

$$\partial_t \mathbf{R}_i = U_0 \hat{\mathbf{q}} + \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j, \hat{\mathbf{q}}) \quad (4.3)$$

où  $U_0$  est la vitesse qu'aurait la particule si elle était isolée,  $\hat{\mathbf{q}} = \hat{\mathbf{x}}$  pour les particules passives et  $\hat{\mathbf{q}} = \hat{\mathbf{p}}_i$  pour les particules actives,  $\hat{\mathbf{p}}_i$  étant la direction de propulsion de la particule  $i$ .  $\mu$  est un coefficient de mobilité inférieur à 1 qui rend compte de la friction avec les parois.  $\mathbf{v}^{\text{dip}}$  est donnée par l'équation Eq. 4.1 pour les particules passives et par l'équation Eq. 4.2 pour les particules actives. Pour l'instant, nous avons fait comme si nos particules étaient isotropes. Le modèle est facilement extensible aux particules faiblement anisotropes. Pour les particules actives, on considérera qu'elles se propulsent dans la direction de leur axe principal. Dans tous les cas, on note  $\hat{\mathbf{p}}_i$  l'orientation de l'axe principal de la particule  $i$  par rapport à la direction  $\hat{\mathbf{x}}$  (Fig. 4.4 a.).

Du point de vue du fluide, la forme de la particule n'influence pas l'écoulement engendré en champ lointain (au premier ordre en  $b/r$  où  $b$  est la dimension typique de la particule). Ce qui change, c'est que la particule va subir un couple de la part du fluide qui va pouvoir modifier son orientation. Ce couple hydrodynamique favorise une orientation des particules le long de l'axe d'élongation locale de l'écoulement [68] (voir Fig. 4.4 b.). Dans notre cas, où l'écoulement est irrotationnel (écoulement potentiel), l'équation d'évolution

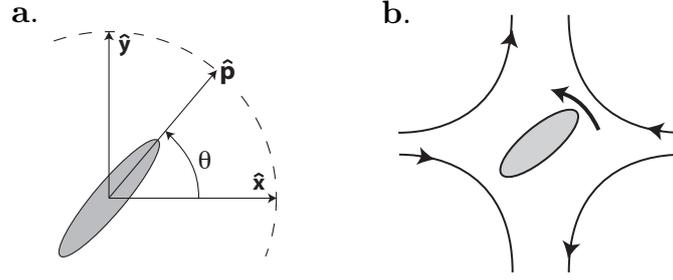


FIGURE 4.4: **a.** L'orientation d'une particule est définie par la direction de son axe principal, repérée par le vecteur unitaire  $\hat{\mathbf{p}}$  ou par l'angle  $\theta$  par rapport à  $\hat{\mathbf{x}}$ . **b.** Une particule anisotrope, placée dans un écoulement de tenseur  $\mathbf{E}$  non nul, tend à s'orienter suivant l'axe d'élongation de l'écoulement.

de l'orientation de la particule  $i$  est :

$$\partial_t \hat{\mathbf{p}}_i = \gamma (\mathbb{I} - \hat{\mathbf{p}}_i \hat{\mathbf{p}}_i) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}_i) \cdot \hat{\mathbf{p}}_i \quad (4.4)$$

où  $\mathbf{E}(\mathbf{R}_i)$  est le tenseur des taux de déformation du fluide en  $\mathbf{R}_i$ .  $\mathbf{E} = \frac{1}{2}[\nabla \mathbf{V} + (\nabla \mathbf{V})^T]$  où  $\mathbf{V}$  est la vitesse locale du fluide.  $\gamma$  est un coefficient de mobilité rotationnelle qui est supérieur à 0 pour les particules anisotropes et qui vaut 0 pour les particules isotropes.

#### 4.1.2 Dynamique grande échelle des cristaux hydrodynamiques

On s'intéresse maintenant à la dynamique de structures cristallines composées de particules passives ou actives. On suppose qu'à l'instant  $t = 0$ , les particules sont placées aux noeuds d'un des cinq réseaux de Bravais (à 2D, on peut construire uniquement cinq types de réseaux ayant des groupes de symétrie différents). Pour simplifier les calculs, on impose deux conditions supplémentaires. Tout d'abord, on suppose que l'orientation initiale de toutes les particules est alignée suivant  $\hat{\mathbf{x}}$ . Deuxièmement, on suppose que la direction de la force extérieure dans le cas des particules passives est alignée avec un des axes principaux du cristal. Il serait facile d'étendre le modèle à des situations plus générales mais la présentation des calculs deviendrait très fastidieuse. Les équations qui décrivent la dynamique du cristal sont les équations Eqs. 4.3 et 4.4 avec la condition supplémentaire que toutes les particules sont initialement placées aux noeuds d'un réseau. On s'intéresse à la stabilité linéaire des cristaux devant des perturbations infinitésimales de la position et de l'orientation des particules. La première chose à faire est de vérifier que l'état initial non perturbé est bien un état stationnaire à partir duquel on peut étudier l'évolution des perturbations. Par des arguments de symétrie, on montre facilement qu'un cristal non perturbé de particules passives est stationnaire quelle que soit l'orientation initiale des particules. Pour les cristaux de particules actives, la stationnarité est assurée si toutes les particules

ont initialement la même orientation. On étudie ensuite la stabilité linéaire de ces états stationnaires face à des perturbations de la position et de l'orientation des particules. On note  $\delta\mathbf{R}_i$  et  $\delta\hat{\mathbf{p}}_i \sim \theta_i\hat{\mathbf{y}}$  les perturbations infinitésimales de la position et de l'orientation de la particule  $i$ , de telle manière que  $\mathbf{R}_i \rightarrow \mathbf{R}_i + \delta\mathbf{R}_i$  et  $\hat{\mathbf{p}}_i \rightarrow \hat{\mathbf{x}} + \theta_i\hat{\mathbf{y}}$ . Les équations du mouvement Eqs. 4.3 et 4.4 sont linéarisées. De manière classique, on passe dans l'espace de Fourier et on cherche les solutions de ces équations couplées sous forme d'ondes planes,  $(\delta X_i, \delta Y_i, \theta_i) \equiv (\delta X, \delta Y, \delta\theta) \exp(i\omega t - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i)$ . Au final, cela revient à chercher les valeurs propres et les modes propres du système linéaire suivant :

$$\omega \begin{pmatrix} \delta X \\ \delta Y \\ \theta \end{pmatrix} = \mathbf{M} \begin{pmatrix} \delta X \\ \delta Y \\ \theta \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

où  $\mathbf{M}$  est une matrice  $3 \times 3$  appelée matrice de stabilité.

Si toutes les valeurs propres de cette matrice sont réelles, le cristal est linéairement stable. Au contraire, si au moins une des valeurs propres est complexe, l'ordre orientationnel et/ou translationnel est linéairement instable. Les modes propres de la matrice de stabilité nous renseignent sur les modes de propagations des perturbations et éventuellement sur les mécanismes de déstabilisation.

## 4.2 Stabilité des cristaux hydrodynamiques : principaux résultats

Dans cette section, je présente brièvement les principaux résultats déduits du modèle présenté ci-dessus. Les détails et les calculs complets sont disponibles dans l'article qui est reproduit dans la section suivante. Je discute également brièvement ici des limites de notre modèle.

### 4.2.1 Stabilité des cristaux de particules passives entraînées par une force extérieure

#### 4.2.1.1 Stationnarité

Comme cela a été mentionné au paragraphe précédent, la première chose à faire avant de réaliser une étude de stabilité linéaire est de vérifier la stationnarité de l'état non perturbé. Dans le cas des cristaux de particules passives, on montre facilement que les cristaux sont stationnaires, et ce quelle que soit l'orientation initiale des particules. Le cas particulier où toutes les orientations sont initialement alignées est donc bien sûr stationnaire. Cette stationnarité découle des symétries des réseaux de Bravais. Par définition, un réseau de Bravais est invariant par toute translation suivant  $(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)$  où  $\mathbf{R}_i$  et  $\mathbf{R}_j$  sont les positions de deux noeuds du réseau. En se servant de cette propriété, on montre facilement que l'équation Eq. 4.3 implique que  $\partial_t(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) = 0$  quels que soient  $i$  et  $j$  et donc que

la structure spatiale est stationnaire. Par ailleurs, l'invariance des réseaux de Bravais sous la transformation de parité  $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$ , implique que le tenseur des taux de déformation du fluide,  $\mathbf{E}$ , est nul au niveau des noeuds du réseau. L'équation Eq. 4.4 implique alors que l'orientation des particules est également stationnaire.

#### 4.2.1.2 Stabilité linéaire

Pour les cristaux de particules passives, le système linéaire 4.5 qui découle de la linéarisation des équations du mouvement et du passage dans l'espace de Fourier prend la forme :

$$\omega \begin{pmatrix} \delta X \\ \delta Y \\ \theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_1 & M_2 & 0 \\ M_2 & -M_1 & 0 \\ M_3 & M_4 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta X \\ \delta Y \\ \theta \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

En regardant la structure de la matrice de stabilité  $\mathbf{M}$ , on s'aperçoit tout de suite que les perturbations en orientation n'ont pas d'effet sur la structure spatiale des cristaux. Cela découle du fait que, dans le cas des particules passives, l'orientation du couplage dipolaire entre les particules est fixée par la direction de la force extérieure et non pas par l'orientation des particules. Au contraire, les perturbations en position influent à la fois sur la structure spatiale et sur la structure orientationnelle. Aussi, puisque la troisième colonne de la matrice  $\mathbf{M}$  est nulle,  $\omega = 0$  est valeur propre du système pour le mode propre (0,0,1) qui correspond aux perturbations en orientation uniquement. Ainsi, si on perturbe uniquement l'orientation des particules et non leur position, rien ne se passe. Les deux autres valeurs propres de  $\mathbf{M}$  sont  $\omega_{\pm} = \pm \sqrt{M_1^2 + M_2^2}$ . En utilisant la symétrie du couplage dipolaire entre les particules, on montre aisément que ces valeurs propres sont toujours réelles, quel que soit le réseau de Bravais. Ce résultat montre que les structures spatiale et orientationnelle des cristaux de particules passives sont stables à l'ordre linéaire. Les perturbations autour de l'état cristallin se propagent sans se dissiper mais sans croître non plus. Ces "phonons" généralisent l'observation faite par l'équipe de R. Bar-Ziv sur la propagation d'ondes de densité dans des cristaux unidimensionnels de gouttes en géométrie confinée [20]. Dans l'article inséré dans la section suivante, on utilise une approximation de type "plus proches voisins" pour calculer explicitement les coefficients de la matrice  $\mathbf{M}$ . Cela nous permet de trouver des expressions approchées pour les relations de dispersion des "phonons" pour les différents réseaux de Bravais. Une analyse des modes propres nous renseigne également sur les directions de propagation des différentes déformations de la structure translationnelle et/ou orientationnelle.

## 4.2.2 Stabilité des cristaux de particules actives

### 4.2.2.1 Stationnarité

Le résultat sur la stationnarité des cristaux de particules passives est facilement généralisable au cas des particules actives. Bien sûr, il faut que l'orientation initiale de toutes les particules soit la même, à défaut de quoi  $\partial_t(\mathbf{R}_i - R_j)$  ne pourrait pas être nul. Dans le cas où toutes les orientations sont alignées, les équations ont la même forme que dans le cas des cristaux de particules passives et la stationnarité découle des mêmes propriétés de symétrie que celles mentionnées plus haut.

### 4.2.2.2 Stabilité linéaire

Contrairement au cas des particules passives, les perturbations en orientation dans les cristaux de particules actives influent sur le déplacement des particules. Cela est dû au fait que la direction de nage de la particule est fixée par son orientation. De même, la direction de la perturbation dipolaire à l'écoulement engendrée par chaque particule dépend de l'orientation de celle-ci. Pour les cristaux de particules actives, il est pertinent de considérer séparément le cas où les nageurs sont isotropes et le cas où ils sont anisotropes.

**Nageurs isotropes** Pour les nageurs isotropes,  $\gamma = 0$  et l'équation Eq. 4.4 se résume à  $\partial_t \hat{\mathbf{p}}_i = \mathbf{0}$ . L'orientation de toutes les particules est fixée par l'orientation initiale et n'évolue pas. En effet, pour faire tourner des particules isotropes, il faudrait leur appliquer un couple. Or on a vu au chapitre précédent que l'écoulement en géométrie quasi-2D est potentiel et qu'il est donc irrotationnel. Il ne s'exerce donc aucun couple qui pourrait conduire à un changement d'orientation des nageurs. La matrice de stabilité définie dans l'équation Eq. 4.5 prend alors la forme :

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} M_1 & M_2 & M_5 \\ M_2 & -M_1 & M_6 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

Les coefficients  $M_1$  et  $M_2$  sont les mêmes que ceux de l'équation Eq. 4.6 à condition que l'orientation des nageurs soit la même que celle de la force extérieure dans le cas des particules passives. On montre facilement que les valeurs propres sont identiques à celles trouvées dans le cas des cristaux de particules passives. Les cristaux constitués de nageurs isotropes nageant dans la même direction sont donc marginalement stables. Ils donnent lieu à la propagation de phonons qui obéissent aux mêmes relations de dispersion que dans le cas des particules passives.

**Nageurs anisotropes** Pour les nageurs anisotropes,  $\gamma \neq 0$  et l'orientation et le déplacement des particules sont couplés de manière réciproque. On ne peut pas dans ce cas obtenir

de résultats généraux sur la stabilité linéaire des cristaux. La stabilité dépend maintenant de la symétrie du réseau ainsi que de la fraction surfacique en particules. Ainsi pour les réseaux carrés et rectangulaires, on montre que la stabilité dépend d'un paramètre lié à la fraction surfacique. Si les cristaux sont dilués, ils sont linéairement stables et des ondes de densité et d'orientation se propagent. Pour les cristaux denses, il existe des modes instables qui détruisent la structure cristalline. Les réseaux hexagonaux, obliques et faces centrées sont toujours instables.

### 4.2.3 Limites du modèle

Le modèle présenté ci-dessus présente bien sûr des limites. Tout d'abord, il faut noter que notre étude s'applique au cas de particules faiblement anisotropes. En effet, l'équation Eq. 4.3 suppose que le coefficient de mobilité  $\mu$  est un scalaire. En principe, la mobilité d'une particule anisotrope est décrite par un tenseur d'ordre 2 qui relie la vitesse de translation de la particule à la force de traînée exercée sur celle-ci. Pour une particule anisotrope, ce tenseur n'est pas diagonal. Le modèle pourrait être étendu facilement au cas de particules fortement anisotropes mais les calculs deviennent alors encore plus fastidieux.

Aussi, si la stabilité linéaire des cristaux composés de particules passives est un résultat exact de notre modèle, l'analyse de stabilité pour les cristaux de particules actives anisotropes a été réalisée à l'aide d'une approximation de type "plus proches voisins". L'utilisation d'une telle approximation demande à être justifiée compte tenu du fait que les interactions hydrodynamiques sont de longue portée. Néanmoins, notons qu'une approximation de ce type a déjà donné des résultats qualitativement corrects dans le cas 3D où les interactions hydrodynamiques décroissent encore plus lentement [24].

Enfin, notre étude considère des cristaux parfaits de taille infinie. En pratique, on ne peut bien sûr pas obtenir des cristaux infinis dans des dispositifs réels. L'étude de la dynamique des bords de structures cristallines de taille finie est donc nécessaire pour appréhender l'utilisation de suspensions cristallines dans des dispositifs microfluidiques. Dans la section 4.3, je présente le travail expérimental que j'ai réalisé au tout début de ma thèse sur la dynamique de petites structures ordonnées de particules en écoulement dans des dispositifs microfluidiques.

## 4.3 Perspectives

Comme mentionné plus haut, il est intéressant d'étudier les effets de bords et plus généralement la dynamique de structures cristallines de taille finie. Au début de ma thèse, j'ai mis au point le montage de "flow lithography" décrit dans la section 2.4 du chapitre 2 et qui permet de fabriquer *in situ* des particules polymères solides. La forme et la position initiale des particules sont fixées par le motif dessiné sur le masque de lithographie. Grâce à cette technique, on peut étudier le comportement sous écoulement de plusieurs

dizaines de particules positionnées de manière précise dans un canal microfluidique. Nos expériences consistent à fabriquer des cristallites de maille carrée composés de plusieurs dizaines de particules (Fig 4.5). Les particules ont une forme cylindrique. Leur taille est fixée par le grossissement de l'objectif utilisé pour conjuguer le plan du masque avec celui du dispositif. Dans nos expériences, les particules ont un diamètre de  $50\mu\text{m}$  et sont initialement distantes, centre à centre, de  $100\mu\text{m}$ . On étudie la dynamique de ces cristallites dans deux situations. La première où la direction de l'écoulement est alignée avec l'axe principal du cristallite. La figure Fig. 4.5 a. montre l'évolution d'un cristallite de maille carrée dans cette situation. La seconde où la direction de l'écoulement est inclinée de  $45^\circ$  par rapport à l'axe du cristallite. La figure Fig. 4.5 b. montre la déformation du cristallite sous ce type d'écoulement. Dans les deux situations, on observe que la structure cristalline est instable à cause des effets de bord. De plus, on remarque que le front avant a tendance à vouloir minimiser sa courbure alors que le front arrière, lui, voit sa courbure augmenter. Cette phénoménologie peut être comprise de manière très qualitative en s'intéressant à la symétrie des perturbations dipolaires engendrées par les particules. La figure Fig. 4.6 illustre le raisonnement. Notons tout d'abord que deux particules placées sur le même axe perpendiculaire à l'écoulement sont plus rapides qu'une particule isolée puisque chacune d'elles est accélérée par la perturbation engendrée par l'autre (Fig 4.6 a.). Si les deux particules ne sont pas contenues dans un axe parallèle ou perpendiculaire à l'écoulement, elles se déplacent selon un angle non nul par rapport à la direction de l'écoulement (Fig. 4.6 b. et c.). Ce déplacement des particules dans la direction transverse à l'écoulement semble pouvoir expliquer en partie la stabilisation des fronts avants et la déstabilisation des fronts arrières (Fig. 4.6 d. et e.). Notons cependant que le déplacement des particules s'accompagne d'une modification de la densité locale qui induit bien sûr une dynamique plus complexe.

La phénoménologie reportée ci-dessus pour les cristallites carrés a déjà été observée dans des simulations numériques effectuées par l'équipe de J. Blawdziewicz [27]. Ils ont étudié l'écoulement d'un cristallite carré constitué de 1000 particules. Les particules sont confinées tel que  $H/d = 1.1$ , avec  $H$  la hauteur du canal et  $d$  le diamètre des particules. L'algorithme de calcul utilisé pour la dynamique des particules est complexe puisqu'il prend à la fois en compte les perturbations à l'écoulement en champ proche et en champ lointain. On voit que dans les deux situations (écoulement aligné avec l'axe du cristal ou orienté de  $45^\circ$  par rapport à celui-ci), la simulation donne des résultats qualitativement similaires à nos expériences (Fig. 4.7). De notre côté, nous avons simulé l'écoulement de cristallites carrés en n'utilisant que le couplage dipolaire entre les particules (champ lointain). On obtient également un accord qualitatif avec nos expériences mais l'accord fait défaut au niveau quantitatif. Cela peut être dû à plusieurs raisons : dans nos expériences, il est difficile d'obtenir des particules réellement monodisperses (pour cela il faut que l'optique du montage de "flow lithography" soit de très bonne qualité). Aussi, comme les particules sont solides, des défauts à la surface du canal peuvent perturber le mouvement des particules.

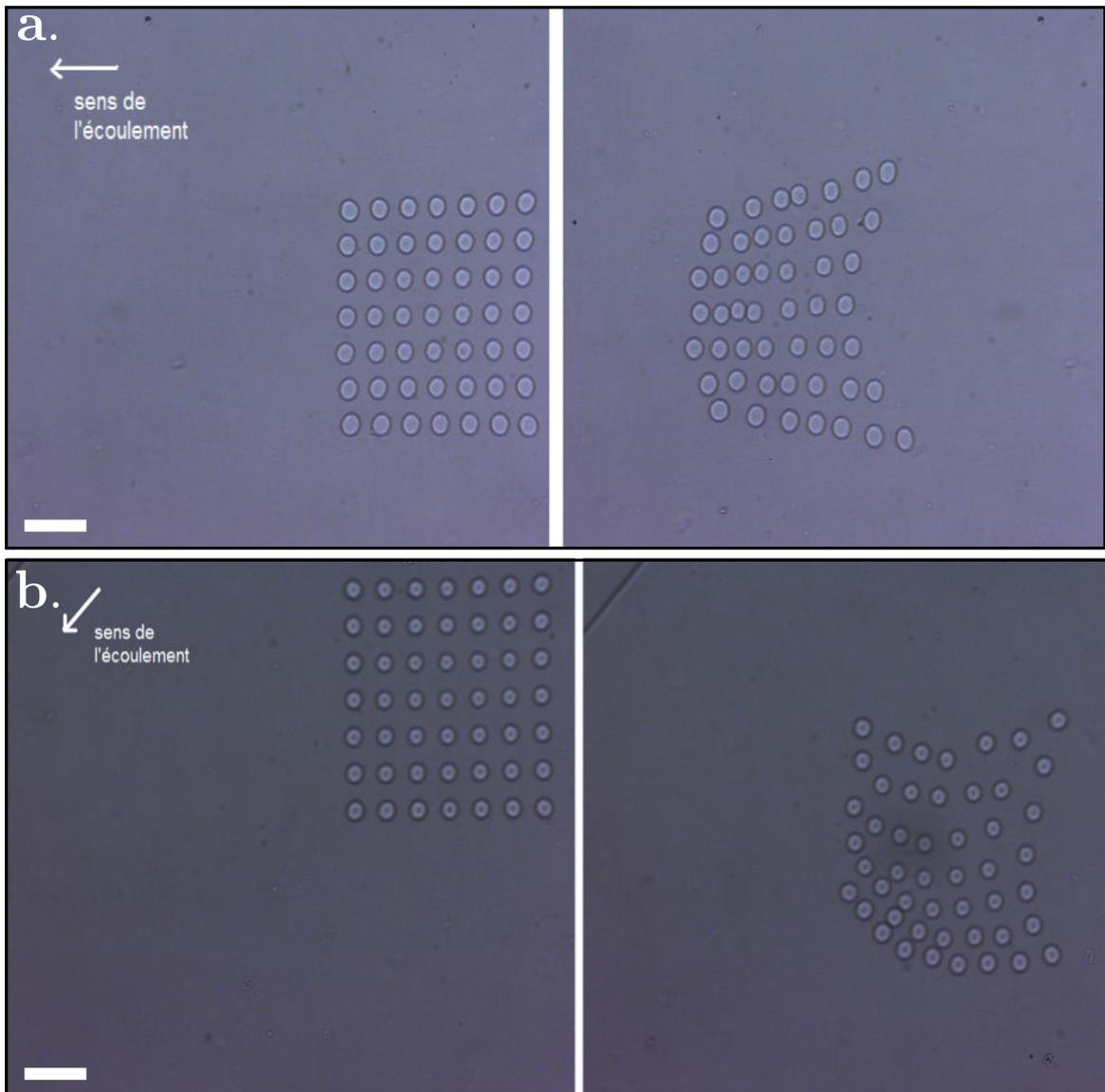


FIGURE 4.5: Écoulement de cristallites 2D de  $7 \times 7$  particules cylindriques de diamètre  $50 \mu\text{m}$ . A partir de  $t = 0$ , on impose un écoulement de vitesse et de direction constantes. Barres d'échelle :  $200 \mu\text{m}$  a. Déformation d'un cristallite carré sous un écoulement orienté suivant un axe principal de la maille. A gauche, le cristallite au temps  $t = 0$ . A droite, le cristallite après 38 s d'écoulement. Vidéo disponible à l'adresse suivante : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/carreseul\\_PC.avi](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/carreseul_PC.avi). b. Déformation d'un cristallite carré sous un écoulement orienté à  $45^\circ$  par rapport à l'axe principal de la maille. A gauche, le cristallite au temps  $t = 0$ . A droite, le cristallite après 48 s d'écoulement. Vidéo disponible à l'adresse suivante : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/carreseulbis\\_PC.avi](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/carreseulbis_PC.avi).

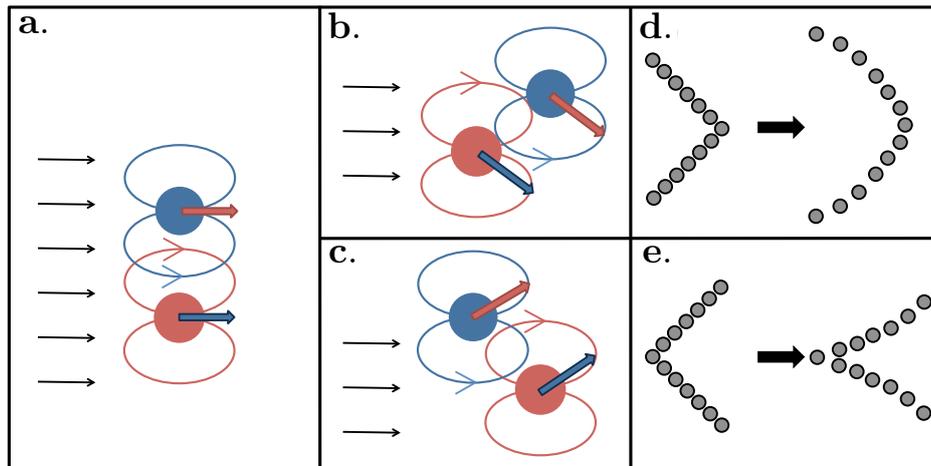


FIGURE 4.6: Illustration du mécanisme de stabilisation et de déstabilisation des fronts. Les flèches noires indiquent la direction de l'écoulement les flèches colorées indiquent la direction de la perturbation induite par l'autre particule. **a.** Des particules sur le même axe perpendiculaire à l'écoulement sont plus rapides qu'une particule isolée. **b.** et **c.** Deux particules qui ne sont pas sur un axe parallèle ou perpendiculaire à la direction du fluide s'écoulent selon un angle non nul par rapport à la direction de l'écoulement imposé. **d.** et **e.** Ecoulement qualitatif de chaînes de particules.

Au niveau de la simulation, on ne prend pas en compte la modification des interactions en champ proche bien qu'on voit dans nos expériences qu'au cours du temps, certaines particules se rapprochent à tel point que l'approximation de champ lointain n'est peut-être plus valable.

Pour le moment, nous n'avons pas de modèle simple qui nous permette de prédire de manière quantitative l'évolution du contour des cristallites. Le saut de densité au niveau des bords ne permet pas de linéariser les équations du mouvement.

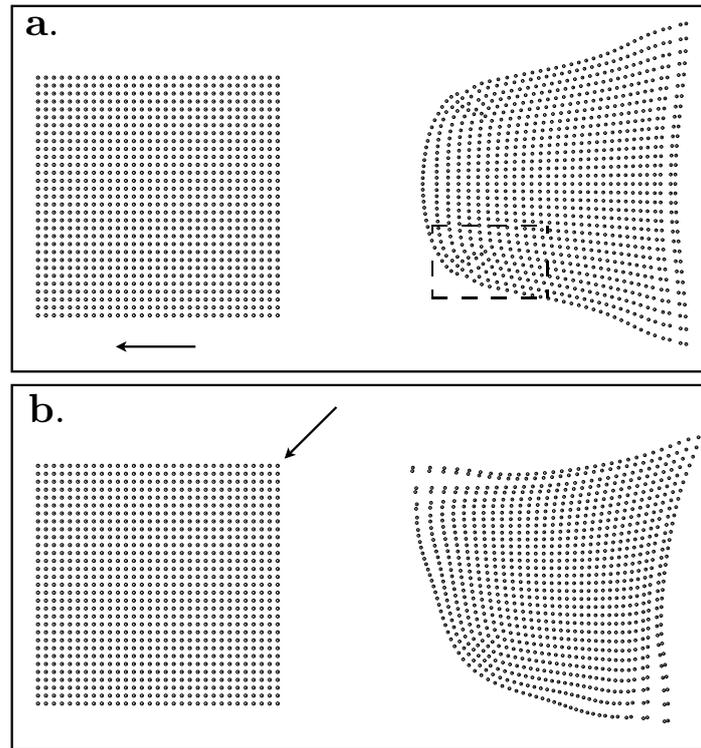


FIGURE 4.7: Images extraites de [27]. Simulations numériques de l'écoulement de cristallites carrés composés d'environ 1000 particules. Les flèches noires indiquent la direction de l'écoulement. **a.** Déformation d'un cristallite carré sous un écoulement orienté suivant un axe principal de la maille. A gauche, le cristallite au temps  $t = 0$ . A droite, le cristallite après 500 pas de temps. **b.** Déformation d'un cristallite carré sous un écoulement orienté à  $45^\circ$  par rapport à l'axe principal de la maille. A gauche, le cristallite au temps  $t = 0$ . A droite, le cristallite après 525 pas de temps.

#### 4.4 Article "Active and driven hydrodynamic crystals"

Je reproduis ci-dessous l'article "Active and driven hydrodynamic crystals" publié dans le journal *European Physical Journal E* (Eur. Phys. J. E, 35 8 (2012) 68).

# Active and driven hydrodynamic crystals

N. Desreumaux<sup>1,a</sup>, N. Florent<sup>2</sup>, E. Lauga<sup>2</sup>, and D. Bartolo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes, CNRS, ESPCI, Université Paris 6, Université Paris 7, 10, rue Vauquelin, 75005 Paris France

<sup>2</sup> Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California San Diego, 9500 Gilman Drive, La Jolla, CA 92093-0411, USA

Received: 4 May 2012 and Received in final form 21 June 2012

Published online: 8 August 2012 – © EDP Sciences / Società Italiana di Fisica / Springer-Verlag 2012

**Abstract.** Motivated by the experimental ability to produce monodisperse particles in microfluidic devices, we study theoretically the hydrodynamic stability of driven and active crystals. We first recall the theoretical tools allowing to quantify the dynamics of elongated particles in a confined fluid. In this regime hydrodynamic interactions between particles arise from a superposition of potential dipolar singularities. We exploit this feature to derive the equations of motion for the particle positions and orientations. After showing that all five planar Bravais lattices are stationary solutions of the equations of motion, we consider separately the case where the particles are passively driven by an external force, and the situation where they are self-propelling. We first demonstrate that phonon modes propagate in driven crystals, which are always marginally stable. The spatial structures of the eigenmodes depend solely on the symmetries of the lattices, and on the orientation of the driving force. For active crystals, the stability of the particle positions and orientations depends not only on the symmetry of the crystals but also on the perturbation wavelengths and on the crystal density. Unlike unconfined fluids, the stability of active crystals is independent of the nature of the propulsion mechanism at the single-particle level. The square and rectangular lattices are found to be linearly unstable at short wavelengths provided the volume fraction of the crystals is high enough. Differently, hexagonal, oblique, and face-centered crystals are always unstable. Our work provides a theoretical basis for future experimental work on flowing microfluidic crystals.

## 1 Introduction

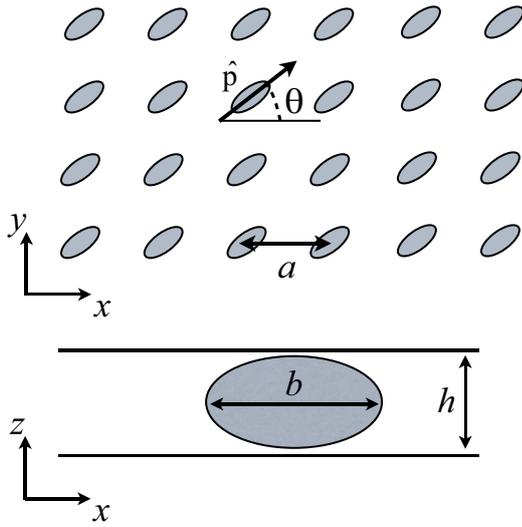
The dynamics of passive suspensions is a field with a long history in physical hydrodynamics. Much effort has been devoted to understand, *e.g.*, the origin of fluctuations in the sedimentation of spheres under gravity as well as instabilities in suspensions of elongated fibers (see reviews in [1,2] and references therein). More recently, a significant experimental [3–5] and theoretical [6–8] research effort has focused on the dynamics of active suspensions where instead of having particles driven by an external field (*e.g.* gravity), one considers the dynamics and interactions of self-propelled synthetic or biological swimmers. In this case, the interplay of activity and hydrodynamic interactions leads to long-wavelength instabilities [9,10].

Most of the past work on passive (driven) and active suspensions has focused on instabilities and fluctuating behavior in three-dimensional systems. However, over the last ten years microfluidics has offered a number of simple and effective solutions to produce and manipulate large ensemble of highly monodisperse microparticles, prone to form crystal structure in quasi-two dimensional chan-

nels [11]. For driven particles, these technological advances have motivated, for example, the study of the nonlinear dynamics of finite flowing crystals [12,13], phonons in one-dimensional microfluidic-droplet crystals [14] and flowing lattices of bubbles [15]. In the case of active particles, these fabrication methods could be extended to self-propelled catalytic colloids [16,17] or reactive droplets [18].

Motivated by these advances, we take in this paper an approach contrasting with the traditional study of disordered suspensions and consider the dynamics of confined driven and active hydrodynamic crystals. We first develop a formalism to study theoretically position and orientation instabilities for flowing discrete suspensions under confinement. In the case of driven particles, we demonstrate formally that all crystals are marginally stable and study in detail the eigenmodes of deformation for all five two-dimensional Bravais lattices. For active particles, we show that square and rectangular crystals are linearly unstable at short wavelengths provided the volume fraction of the crystals is high enough. Differently, hexagonal and oblique (respectively face-centered) crystals are always unstable for long- (respectively short-) wavelength perturbations. In contrast with past work on three-dimensional swimmers suspensions, the stability of confined active crystals

<sup>a</sup> e-mail: nicolas.desreumaux@espci.fr



**Fig. 1.** Schematic representation of the problem addressed in this paper: an extended hydrodynamic crystal is composed of anisotropic particles confined in a channel of height  $h$  which are either actively swimming or passively driven by an external force (top- and side-views).

is found to be independent of the pusher *vs.* puller nature of the actuation of individual active particles [19].

## 2 Theoretical setup

### 2.1 Particle crystal in a confined fluid

We start by describing the theoretical framework we use to quantify the large-scale dynamics of both active and driven microfluidic crystals. We focus our study on the case of identical particles living in quasi-bidimensional fluids, as sketched in fig. 1. The fluid is Newtonian and has a homogeneous thickness  $h$  in the  $z$ -direction, comparable to the size of the particles. Our formalism will be valid both for thin films lying on a solid substrate (with one free surface and one no-slip wall), and for microfluidic geometries where the fluid is confined between two parallel plates. The particles can be either axisymmetric or anisotropic and are organized in two-dimensional crystal, see fig. 1. If  $a$  denotes the typical lattice spacing of the crystal and  $b$  the typical extent of the particle in the  $(x, y)$ -plane, we consider in this paper the dynamics in the dilute limit, *e.g.*,  $a \gg b$ . In this limit, each particle  $i$  is appropriately modeled as a pointwise body characterized by its in-plane position,  $\mathbf{R}_i(t) \equiv (x_i(t), y_i(t))$ , and its in-plane orientation,  $\hat{\mathbf{p}}_i(t)$ , where  $\hat{\mathbf{p}}_i$  is a unit vector making an angle  $\theta_i(t)$  with the  $\hat{\mathbf{x}}$ -axis. Having microscopic systems in mind, we neglect the particle inertia and work in the limit of zero Reynolds number. In this Hele-Shaw setup, it is a classical result that the fluid flow is potential [20]. The  $z$ -averaged fluid velocity,  $\mathbf{V}$  and the  $z$ -averaged pressure,  $P$ , are therefore related by

$$\mathbf{V}(\mathbf{r}) = -G\nabla P, \quad (1)$$

where  $G = \alpha h^2 / \eta$ ; here  $\eta$  is the fluid viscosity, and  $\alpha = 1/3$  for a thin film, and  $\alpha = 1/12$  for a shallow microchannel. Together with incompressibility,  $\nabla \cdot \mathbf{V} = \mathbf{0}$ , eq. (1) determines the fluid flow and stress away from the particles.

We henceforth consider either swimmers moving along their principal axis  $\hat{\mathbf{p}}_i$ , or passive particles driven by a uniform force field oriented along the  $x$ -direction (gravitational, electrostatic, magnetic, ...). In all cases, the speed of an isolated particle in a quiescent fluid is constant and denoted  $U_0$ . In addition to their individual dynamics, particles also follow the surrounding flow, and the equation of motion for particle  $i$  thus reads

$$\partial_t \mathbf{R}_i = U_0 \hat{\mathbf{q}} + \mu \mathbf{V}(\mathbf{R}_i), \quad (2)$$

where  $\hat{\mathbf{q}} = \hat{\mathbf{p}}_i$  for swimmers,  $\hat{\mathbf{q}} = \hat{\mathbf{x}}$  for driven particles, and  $\mu$  is a non-dimensional mobility coefficient [14,21]. Passive tracers have  $\mu = 1$ . Conversely, for thick particles, the friction against the solid wall(s) can significantly reduce the advection speed, which is smaller than the local fluid velocity, and thus  $0 < \mu < 1$ . In principle,  $\mu$  should be a tensor for anisotropic particles but for simplicity we consider only particles which are weakly anisotropic and thus  $\mu$  is assumed to remain a scalar<sup>1</sup>. In addition to a change in their velocity, anisotropic particles experience hydrodynamic torques which favor an orientation along the local elongation axis of the flow. This classical hydrodynamic result, which can also be anticipated from symmetry arguments, leads to the so-called Jeffery's orbits [22]. As the flow is irrotational (potential flow), the orientational dynamics reduces to

$$\partial_t \hat{\mathbf{p}}_i = \gamma (I - \hat{\mathbf{p}}_i \hat{\mathbf{p}}_i) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}_i) \cdot \hat{\mathbf{p}}_i, \quad (3)$$

where  $\mathbf{E}$  is the strain rate tensor,  $\mathbf{E} = \frac{1}{2}[\nabla \mathbf{V} + (\nabla \mathbf{V})^T]$ , and  $\gamma \geq 0$  is a rotational mobility coefficient which is non-zero for anisotropic particles and zero for axisymmetric bodies.

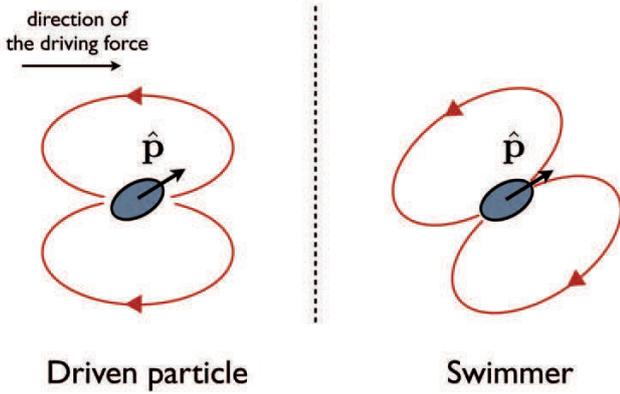
### 2.2 Long-range hydrodynamic interactions

As a particle located at  $\mathbf{R}(\mathbf{t})$  moves in the fluid, it induces a far-field velocity, denoted  $\mathbf{v}(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ , at position  $\mathbf{r}$ . A given particle  $i$  responds to the flow induced by all the other particles in the crystal, and is therefore advected at velocity  $\mathbf{V}(\mathbf{R}_i) = \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)$ . In this section we provide a quantitative description of the far-field hydrodynamic coupling,  $\mathbf{v}$ , between the particles; for the sake of clarity, we separate the case of passive and active particles.

#### 2.2.1 Hydrodynamic interactions between driven particles

In the driven case, each particle of the crystal is subject to a constant external force,  $\mathbf{f} = f\hat{\mathbf{x}}$ , which results in a far-field perturbation which we denote  $\mathbf{v}^1$  and is the

<sup>1</sup> Note that the anisotropy of the mobility coefficient is much weaker in confined than in unbounded fluids due to the short range of hydrodynamic interactions in quasi-2D geometries.



**Fig. 2.** Sketch of the dipolar flow field (potential source dipole) induced by driven particles (left) and active swimmers (right).

Green's function of eq. (1). In three-dimensional flows, the response to a force monopole is known as a Stokeslet, and decays spatially as  $\sim 1/r$ . In our quasi-2D geometries, solid walls act as momentum sinks and screen algebraically the Stokeslet contribution, which then decays as  $\mathbf{v}^1 \sim 1/r^2$  and takes the functional form of a potential source dipole, as shown in [23,24]. In addition, the particles have a finite size and their advection by the surrounding fluid is hindered by the lubrication forces induced by the confining walls (even in the absence of external driving). Due to incompressibility, any relative motion with respect to the fluid results in another algebraic far-field contribution,  $\mathbf{v}^2$ . As shown, *e.g.*, in [14],  $\mathbf{v}^2$  has also the form of a potential dipole with the same spatial decay,  $\mathbf{v}^2 \sim 1/r^2$ . (We note that in unbounded fluids, this potential contribution scales as  $1/r^3$  and is thus subdominant with respect to the flow induced by a pointwise force, which decays as  $1/r$ .) Therefore, in confined flows, the two contributions have the same form [14,23] and the overall flow disturbance,  $\mathbf{v}^d = \mathbf{v}^1 + \mathbf{v}^2$ , takes the form of a  $x$ -dipole

$$\mathbf{v}^d(\mathbf{r}) = \frac{\sigma}{2\pi r^2} (2\hat{\mathbf{r}}\hat{\mathbf{r}} - I) \cdot \hat{\mathbf{x}}, \quad (4)$$

where  $r = |\mathbf{r}|$  and the dipole strength,  $\sigma$ , is the sum of the two contributions,  $\sigma = Ab^2Gf + Bb^2U_0$ , where  $A$  and  $B$  are two dimensionless shape factors ( $I$  is the identity tensor). The symmetry of the streamlines for this flow field are illustrated in fig. 2 (left).

### 2.2.2 Hydrodynamic interactions between active swimmers

By definition swimmers do not require an external force to propel themselves. The stress distribution on the surface of a self-propelled particle has thus, at least, the symmetry of a force dipole [25]. The canonical theoretical setup used to describe (dilute) suspensions of swimmers is to consider an ensemble of such force-dipoles as all other multipolar contributions to the far field are subdominant in an unbounded fluid [9,19,26]. However, as mentioned above, confinement results in an algebraic screening of the hydrodynamic interactions. In the quasi-2D geometry at

the center of our paper a force dipole decays spatially as  $\sim 1/r^3$ , a contribution which is therefore subdominant compared to the  $\sim 1/r^2$  potential dipole arising from incompressibility (similarly to driven particles) [23]. For active swimmers, the far-field flow disturbance has thus also the symmetry of a potential source dipole, the difference with the passive case being that the dipole direction is now the swimmer orientation (fig. 2, right). For a swimmer orientated along  $\hat{\mathbf{p}}$ , we obtain a flow given by

$$\mathbf{v}^s(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}) = \frac{\sigma}{2\pi r^2} (2\hat{\mathbf{r}}\hat{\mathbf{r}} - I) \cdot \hat{\mathbf{p}}, \quad (5)$$

with the dipole strength  $\sigma = Bb^2U_0$  ( $B$  is the same shape factor as in eq. (4)). We therefore see that, in confined fluids, the usual distinction between pushers and pullers swimmers (contractile and extensile), which is at the heart of qualitatively different behaviors in unconfined fluids [7, 8], is irrelevant. The magnitude and sign of the induced dipolar flow are solely set by that of the swimming speed, irrespective of the microscopic swimming mechanism.

In summary, eqs. (2), (3), and either eq. (4) (in the driven case) or (5) (active case) fully prescribe the dynamics of the discrete particle positions and orientations. As noted above, the main difference between active and passive particles concerns the orientation of the dipolar flow field: the orientation is slaved to the swimmer direction for active particles whereas it is constant and aligned along the  $x$ -direction for driven particles (the difference is further illustrated in fig. 2). We will show in the next sections that this distinction markedly impacts the large-scale crystal dynamics.

## 3 Are hydrodynamic crystals stationary?

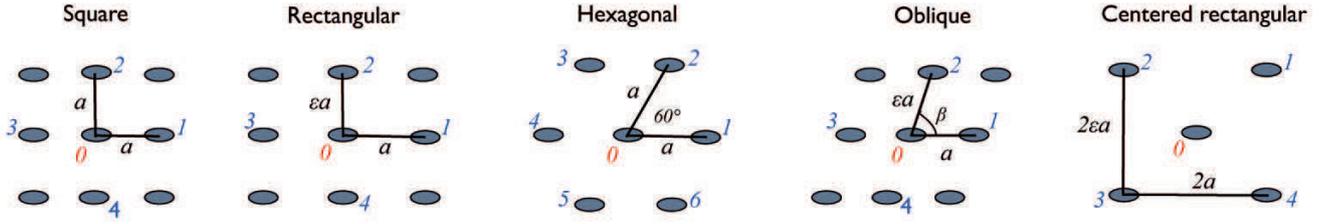
When addressing the dynamics of an ordered phase, the first important question is whether this phase does correspond to a stationary state. We focus here on the five planar Bravais crystals, which encompass all possible symmetries for bidimensional mono-atomic crystals (see fig. 3).

Let us first consider the case of crystals composed of driven axisymmetric particles. The equations of motion reduce to

$$\partial_t \mathbf{R}_i = U_0 \hat{\mathbf{x}} + \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^d(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j), \quad (6)$$

where  $\mathbf{R}_i$ 's belong to one of the Bravais crystals from fig. 3. The lattice structure is conserved provided that  $\partial_t(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) = 0$  for all  $i$  and  $j$ . It follows from eq. (6) that  $\partial_t(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) = \mu \sum_{k \neq i} \mathbf{v}^d(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_k) - \mu \sum_{k \neq j} \mathbf{v}^d(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_k)$ . By definition, all crystals are invariant upon translation along  $(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)$ , which readily implies that the two sums are equal, and therefore that any driven crystal made of axisymmetric particles is a stationary structure (*i.e.*,  $\partial_t(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) = 0$ ).

To extend this result to driven crystals composed of anisotropic particles, we first recall that all the Bravais lattices are invariant upon the parity transformation  $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$ .



**Fig. 3.** Geometry of the five planar Bravais lattices. Anisotropic cells are characterized by the ratio,  $\epsilon$ , between the two cell dimensions. The angle  $\beta$  is the tilt angle of the oblique and hexagonal cells. For each particle labeled “0” we also display and number all nearest neighbors.

Moreover, as  $\mathbf{v}^d(\mathbf{r})$  is invariant upon this transformation whereas the sign of the gradient operator is reversed, we see that the strain rate tensor constructed from a superposition of potential source dipoles, eq. (4), transforms according to  $\mathbf{E}(-\mathbf{r}) = -\mathbf{E}(\mathbf{r})$ . This implies that for any Bravais crystal,  $\mathbf{E}(\mathbf{R}_i)$  is identically zero anywhere on the lattice. It follows from the equation for the orientational dynamics, eq. (3), that  $\partial_t \hat{\mathbf{p}}_i = 0$  for all the particles. In conclusion, in the driven case, both the crystalline structure and the particle orientations remain stationary (in other words, the crystals are fixed points of the dynamical system).

It is straightforward to generalize the above results to swimmer crystals. The equation of motion for the positions, eq. (6), is given by

$$\partial_t \mathbf{R}_i = U_0 \hat{\mathbf{p}}_i + \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^s(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j, \hat{\mathbf{p}}_j). \quad (7)$$

Obviously,  $\partial_t(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)$  cannot be zero if the  $\hat{\mathbf{p}}_i$ 's are not all identical. Therefore, the crystal structure cannot be conserved if the initial orientation of the particles is not uniform—in such cases the crystal would “melt”. For uniform orientations, say along  $\hat{\mathbf{x}}$ , eqs. (6) and (7) are identical, and so is the equation for the orientational dynamics since  $v^s(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}_i) = v^d(\mathbf{r})$ . We are thus left with the same problem as in the driven case, which implies that the structure of the crystals is conserved as long as the particles all swim along the same direction.

#### 4 Driven hydrodynamic crystals are marginally stable

We start by investigating in this section the linear stability of the five Bravais crystals with respect to perturbations in both the position and the orientation of the particles, with a special focus on the experimentally relevant square and hexagonal lattices. Anticipating on our results, we note that the geometrical classification in terms of the Bravais lattices might not necessarily be relevant to the dynamics of flowing crystals.

In order to proceed, we make use of two additional assumptions. Firstly, we consider the case of particles uniformly aligned along the  $\hat{\mathbf{x}}$ -axis prior to the perturbations, as depicted in fig. 3. Secondly we assume that the driving

force is aligned with one of the principal axes of the crystal. Our following study can be easily extended to a more general setup, but this would make the formula and the discussions much more tedious.

We denote  $\delta \mathbf{R}_i$  and  $\delta \hat{\mathbf{p}}_i \sim \theta_i \hat{\mathbf{y}}$  the infinitesimal perturbations of the particle positions and orientations, respectively, so that  $\mathbf{R}_i \rightarrow \mathbf{R}_i + \delta \mathbf{R}_i$ , and  $\hat{\mathbf{p}}_i \rightarrow \hat{\mathbf{x}} + \theta_i \hat{\mathbf{y}}$ . Using the property that  $\mathbf{E} = 0$  for dipoles organized into a Bravais lattice (as discussed in the previous section), and after some algebra, the linearization of the equations of motion, eqs. (3) and (6), yields

$$\partial_t \delta \mathbf{R}_i = \mu \sum_{j \neq i} [\nabla \mathbf{v}^d(\mathbf{R}_{ij})] \cdot \delta \mathbf{R}_{ij}, \quad (8)$$

and

$$\partial_t \theta_i = \frac{\gamma}{2} \sum_{j \neq i} (\nabla [\partial_x v_y^d(\mathbf{R}_{ij}) + \partial_y v_x^d(\mathbf{R}_{ij})]) \cdot \delta \mathbf{R}_{ij}, \quad (9)$$

where  $\mathbf{R}_{ij} = \mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j$ , and  $\delta \mathbf{R}_{ij} = \delta \mathbf{R}_i - \delta \mathbf{R}_j$ . Equations (8) and (9) dictate the dynamics of the elementary excitations in the frame where the unperturbed crystal is stationary. We note that the direction of the crystal translation is, in general, different from the driving direction.

We now exploit the symmetries of the dipolar interactions. Inspecting the flow given by eq. (4), we deduce that  $\partial_x v_y^d = \partial_y v_x^d$ , and  $\partial_x v_x^d = -\partial_y v_y^d$ . Using these relations, we look for plane waves solutions,  $(\delta X_i, \delta Y_i, \theta_i) \equiv (\delta X, \delta Y, \theta) \exp(i\omega t - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i)$ . By doing so, we obtain a linear-stability system, which we write in the generic form

$$\omega \begin{pmatrix} \delta X \\ \delta Y \\ \theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_1 & M_2 & 0 \\ M_2 & -M_1 & 0 \\ M_3 & M_4 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta X \\ \delta Y \\ \theta \end{pmatrix}, \quad (10)$$

where the coefficients of the stability matrix  $\mathbf{M}$  are

$$M_1 = -i\mu \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_x v_x^d(\mathbf{R}_{ij}), \quad (11)$$

$$M_2 = -i\mu \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_x v_y^d(\mathbf{R}_{ij}), \quad (12)$$

$$M_3 = -i\gamma \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_{xx} v_y^d(\mathbf{R}_{ij}), \quad (13)$$

$$M_4 = -i\gamma \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_{yx} v_y^d(\mathbf{R}_{ij}). \quad (14)$$

We readily deduce from the matrix structure that a perturbation in orientations only would not induce any change in the crystal conformation. This is a direct consequence of the dipolar coupling between the particles,  $\mathbf{v}^d$ , which is only a function of the driving force direction and not of the particle orientation. On the contrary, perturbations in the position of a particle modify both position and orientation. In addition, perturbations in orientation only neither relax, grow or propagate. As the third column of the matrix  $\mathbf{M}$  is always 0, this implies that it will always admit the eigenvalue  $\omega_0 = 0$ , associated to the pure-orientation eigenmode  $(0, 0, 1)$ .

The other two eigenvalues of the  $\mathbf{M}$  matrix are  $\omega_{\pm} = \pm\sqrt{M_1^2 + M_2^2}$ . Exploiting again the fact that all Bravais lattices are invariant upon parity transformation, we write

$$M_1 = -\frac{i\mu}{2} \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_x v_x^d(\mathbf{R}_{ij}) - \frac{i\mu}{2} \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ji})] \partial_x v_x^d(\mathbf{R}_{ji}). \quad (15)$$

By definition  $\mathbf{R}_{ij} = -\mathbf{R}_{ji}$ , and due to the dipolar symmetry of the hydrodynamic interaction, we have  $\partial_x v_x^d(\mathbf{r}) = -\partial_x v_x^d(-\mathbf{r})$ . Using these two equalities in eq. (15), we infer that  $M_1 = -\mu \sum_{j \neq i} \sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij}) \partial_x v_x^d(\mathbf{R}_{ij})$ , and therefore  $M_1$  is a real number. Using the same method, and the identity  $\partial_x v_y^d(\mathbf{r}) = -\partial_x v_y^d(-\mathbf{r})$ , one can show that  $M_2$  is real as well. Therefore, for any symmetry of the crystal, the pulsations of the plane waves,  $\omega_{\pm}$ , are real. In other words, for any Bravais lattice the crystal structure of driven particles is dynamically marginally stable.

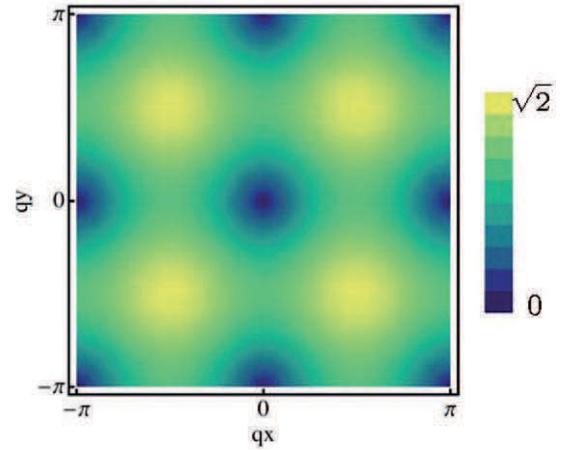
Notably, the dipole strength  $\sigma$  can be eliminated from the equations of motion, eqs. (8) and (9), by rescaling the timescale. Therefore, the linear stability of the monocrystals is a purely geometrical problem. The corresponding eigenmodes do not depend on the translational speed  $U_0$ , but only on the orientation, and on the symmetries of the lattice.

Interestingly, we see that phonons propagate with the pulsations  $\omega_{\pm}$ , despite the fact that particles have no inertia and that no potential forces couple the particle displacements. This seemingly counterintuitive result generalizes the experimental observations made by Beatus and coworkers in [14] where they revealed that sound modes propagate along 1D droplet crystals flowing in quasi-2D microchannels. These results are, importantly, specific to the quasi-2D geometry, which is relevant for numerous microfluidic and thin films applications. In unbounded fluids, the change in the symmetry of the hydrodynamic interactions results in the destabilization of the crystal structure as shown theoretically and experimentally [27].

Below, we derive the dispersion relation for each of the five Bravais crystals, with a special attention given to the case of square and hexagonal lattices

#### 4.1 Square lattice

In order to compute the coefficients of the  $\mathbf{M}$ -matrix analytically, we now make a nearest-neighbor approxima-



**Fig. 4.** Normalized dispersion relation for the square lattice plotted from eq. (17) ( $\omega_+$  only), for  $2\mu\sigma/\pi a^2 = 1$ , and  $a = 1$ .

tion. In a similar context, this approximation has proven to yield qualitatively correct results for unbounded fluids [27]. We introduce a reference particle labelled as 0. The four nearest neighbors in the square crystal are labeled as 1, 2, 3, and 4 (fig. 3). In this geometry, we easily compute the coefficient of the  $\mathbf{M}$  matrix as

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \begin{pmatrix} \sin(q_x a) & -\sin(q_y a) & 0 \\ -\sin(q_y a) & -\sin(q_x a) & 0 \\ 0 & -\frac{3\gamma i}{\mu a} [\cos(q_x a) + \cos(q_y a) - 2] & 0 \end{pmatrix}. \quad (16)$$

The dispersion relation of the infinitesimal excitations can be deduced by diagonalizing  $\mathbf{M}$ . The three eigenvalues are  $\omega_0 = 0$ , and

$$\omega_{\pm} = \pm \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \sqrt{\sin^2(q_x a) + \sin^2(q_y a)}. \quad (17)$$

This dispersion relation is plotted in fig. 4.

To gain insight into the propagating modes, we focus on the large-scale (long-wavelength) response of the crystals. Expanding eq. (16) at leading order in the wave vector amplitude for  $q \rightarrow 0$ , we find

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi a^2} \begin{pmatrix} q_x & -q_y & 0 \\ -q_y & -q_x & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \mathcal{O}(q^2). \quad (18)$$

We notice that in this small- $q$  limit, the orientation and the position degrees of freedom are totally decoupled. The three eigenvalues are  $\omega_0 = 0$ , and  $\omega_{\pm} = \pm 2\mu\sigma q / (\pi a^2)$ . The two non-trivial modes are non-dispersive and propagate with a constant “sound velocity”  $c_{\pm} = \pm 2\mu\sigma / (\pi a^2)$ , which increases with the magnitude of the hydrodynamic coupling.

To understand physically how the excitations propagate, we focus on two specific cases. Let us first consider longitudinal perturbations,  $\mathbf{q} = q\hat{\mathbf{x}}$ . The mode  $\omega_-$  is here associated with the eigenvector  $(0, 1, 0)$ . It corresponds to shear waves which propagate in the direction opposite to

the driving, as illustrated in fig. 5A. The second sound mode ( $\omega_+$ ) corresponds to compression waves along the  $x$ -axis propagating in the driving direction, see fig. 5B. The corresponding eigenvector is  $(1, 0, 0)$ .

For excitations propagating in the direction transverse to the driving,  $\mathbf{q} = q\hat{y}$ , the eigenmodes couple the displacements along the two principal axes of the crystal. The mode  $\omega_-$  is associated with the eigenvector  $(1, 1, 0)$ . It corresponds to the superposition of a compression mode in the  $\hat{y}$  direction, in phase with a shear in the  $\hat{x}$  direction. The second mode ( $\omega_+$ ), with eigenvector  $(-1, 1, 0)$ , is a combination of a dilation in the  $\hat{y}$  direction, which propagates in antiphase with a shear wave in the  $\hat{x}$  direction.

To close, we note that the dispersion relation of the phonons remains unchanged if the driving force is not aligned with one of the principal axes of the crystal, although in that case the form of the eigenmodes is more complex.

## 4.2 Hexagonal lattice

We now consider the case of the hexagonal lattice. The main technical difference with the square lattice is that the reference particle 0 has now six nearest neighbors, see fig. 3. Repeating the same procedure as above, we compute the coefficients of the stability matrix and obtain

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \begin{pmatrix} M'_1 & 0 & 0 \\ 0 & -M'_1 & 0 \\ M'_3 & M'_4 & 0 \end{pmatrix}, \quad (19)$$

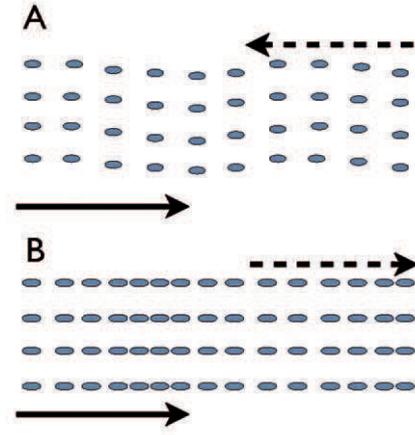
where

$$\begin{cases} M'_1 = \sin(q_x a) - 2 \sin\left(\frac{q_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y \sqrt{3} a}{2}\right), \\ M'_3 = \frac{3\gamma\sqrt{3}i}{\mu a} \sin\left(\frac{q_x a}{2}\right) \sin\left(\frac{q_y \sqrt{3} a}{2}\right), \\ M'_4 = -\frac{3\gamma i}{\mu a} \left[ \cos(q_x a) - \cos\left(\frac{q_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y \sqrt{3} a}{2}\right) \right]. \end{cases} \quad (20)$$

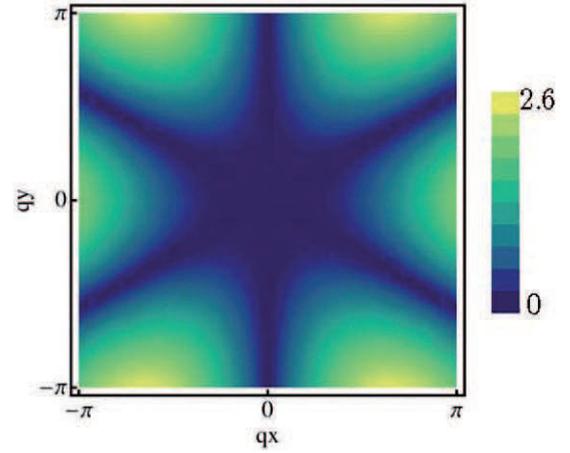
Notably, the upper-left  $2 \times 2$  sub-bloc of  $\mathbf{M}$  is diagonal. As a consequence, an excitation of the position along one direction ( $x$  or  $y$ ) induces no net displacement in the transverse direction. The dispersion relation, plotted in fig. 6, is given by

$$\omega_{\pm} = \pm \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \left| \sin(q_x a) - 2 \sin\left(\frac{q_x a}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y \sqrt{3} a}{2}\right) \right|. \quad (21)$$

We see from eq. (21) that there exist two specific orientations of the wavevectors for which no excitation propagates. For perturbations making angles equal to  $\pi/6$ , (respectively,  $\pi/2$ ) with the  $x$ -axis, we obtain  $M'_1 = 0$  (respectively,  $M'_1 = M'_3 = 0$ ); in these cases, the matrix is not diagonalizable and the only solutions of eq. (19) is



**Fig. 5.** Sketch of the propagative eigenmodes in a square lattice for  $q_y = 0$ . The full line corresponds to the direction of the driving, the dotted line indicates the direction of the wave propagation. A: shear modes; B: compression modes. The particle orientations are not affected by the perturbation.



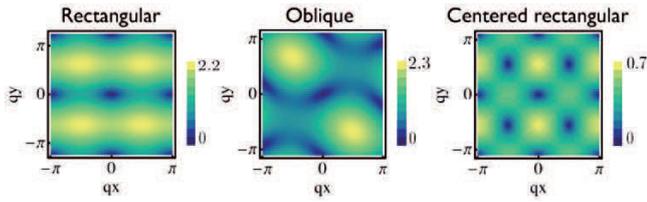
**Fig. 6.** Normalized dispersion relation for the hexagonal lattice plotted from eq. (21) ( $\omega_+$  only), for  $2\mu\sigma/\pi a^2 = 1$ , and  $a = 1$ .

$\omega = 0$ . Phonons therefore do not propagate in those two directions.

To illustrate the difference in the dynamics between the hexagonal and the square crystals we consider the behavior in the long-wavelength limit. Expanding eq. (19) at leading order in  $q$ , we obtain

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi} \begin{pmatrix} -\frac{1}{8}q_x^3 + \frac{3}{8}q_y^2 q_x & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{8}q_x^3 - \frac{3}{8}q_y^2 q_x & 0 \\ \frac{9\gamma}{4\mu a^2} i q_x q_y & \frac{9\gamma}{8\mu a^2} i (q_x^2 - q_y^2) & 0 \end{pmatrix}, \quad (22)$$

and the eigenvalue takes the form  $\omega_{\pm} = \pm \frac{\mu\sigma}{4\pi} |3q_x q_y^2 - q_x^3|$ . We infer from this formula that hydrodynamic crystals having an hexagonal symmetry are “softer” than square crystals. When  $q \rightarrow 0$ , the speed of sound goes to 0 as  $q^2$  and even the large-wavelength phonons are dispersive. Furthermore, the sound modes couple the displacements and the orientation of the particles.



**Fig. 7.** Normalized dispersion relations for the rectangular, oblique and centered rectangular lattices ( $\omega_+$  only), for  $2\mu\sigma/\pi a^2=1$ , and  $a=1$ . Rectangular:  $\epsilon = 0.8$ . Oblique:  $\epsilon = 0.9$  and  $\beta = (\pi/2) - 0.2$ . Centered rectangular:  $\epsilon = 0.9$ .

To convey a more intuitive picture, we again focus on two specific directions of propagation. We first consider longitudinal perturbations along the first principal axis of the crystal,  $\mathbf{q} = q\hat{\mathbf{x}}$ . As above, we find that one of the eigenvectors corresponds to a pure compression along the  $x$ -axis,  $(1, 0, 0)$ . The second eigenvector,  $(0, -iq/9, 1)$ , mixes shear and orientational waves (bending modes) in quadrature, and depends explicitly on  $q$ . Such a coupling was not observed for the square lattice. A second simple case concerns the excitations propagating along the second principal direction, namely  $\mathbf{q} = \cos(\pi/3)\hat{\mathbf{x}} + \sin(\pi/3)\hat{\mathbf{y}}$ . Here, the two eigenmodes mix the particle displacements (in only one of the two directions, since  $x$  and  $y$  cannot couple) and their orientation. They are given by  $(0, -2iq/9, 1)$  and  $(-2iq/(9\sqrt{3}), 0, 1)$  and correspond to  $\omega_-$  and  $\omega_+$ , respectively.

### 4.3 Rectangular, oblique, and face-centered lattices

The lattice geometries corresponding to the rectangular, the oblique and the face-centered lattices are shown in fig. 3. To derive the eigenmodes, we restrict our analysis to calculations with four nearest neighbors, an assumption which restrains the number of crystals for which our calculations are correct (weakly anisotropic and weakly tilted lattices only, as sketched in fig. 3). It is straightforward to proceed mathematically as in the two previous cases and derive the two sound modes,  $\omega_{\pm}$ , propagating. The results for the dispersion relation are plotted in fig. 7. In the small  $q$ -limit, these phonons always propagate in a dispersive manner. As  $q$  goes to zero, the sound velocities reach a constant value which depends on the orientation of the propagation due to the crystal anisotropy.

### 4.4 Response of driven hydrodynamic crystals to finite-amplitude perturbations

Before closing this section, we make a final remark regarding the stability of all the five Bravais crystals with respect to finite-amplitude perturbations. We start by a simple observation on the relationship between the various lattices. A rectangular lattice corresponds to a square lattice transformed upon a finite homogeneous stretching. An oblique lattice is obtained by stretching and shearing a square lattice. The hexagonal lattice is an oblique

lattice with a tilt angle of  $\pi/3$ . Finally, a face-centered lattice is obtained from a rectangular lattice by applying a shear modulated at the highest possible wavelength ( $q = 2\pi/a$ ). As all these structures are stationary, and marginally stable at the linear level, we can deduce that any finite amplitude deformation corresponding to a homogeneous shear, or stretch, of the crystal would also be a marginal perturbation: their growth rate would be zero. The same conclusion also holds for rectangular crystals deformed by the specific high- $q$  shear that would transform them into a face-centered lattice.

## 5 Hydrodynamic stability of active crystals

We now move on to investigate the linear stability of active swimmer crystals. To do so, we use the same theoretical framework as in the previous section. The swimmers self-propel along one of the principal axes of the crystals. We also recall that in this active case, the swimming direction is slaved to the particle shape and so is the dipolar flow (fig. 2). Following the same strategy as in the case of driven particles, we first establish the linearized equations of motion. Combining eqs. (3), (5) and (7), we obtain

$$\begin{aligned} \partial_t \delta \mathbf{R}_i &= U_0 \theta_i \mathbf{e}_y \\ &+ \mu \sum_{j \neq i} \left( [\nabla \mathbf{v}^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{x}})] \cdot \delta \mathbf{R}_{ij} + [\partial_\theta \mathbf{v}^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{x}})] \theta_j \right), \end{aligned} \quad (23)$$

and

$$\begin{aligned} \partial_t \theta_i &= \gamma \sum_{j \neq i} \left[ \nabla \left[ \partial_x v_y^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{x}}) \right] \cdot \delta \mathbf{R}_{ij} \right. \\ &\left. + \partial_\theta E_{yx}^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{p}}_j = \hat{\mathbf{x}}) \theta_j \right], \end{aligned} \quad (24)$$

where  $E_{yx}^s$  is the  $(y, x)$  component of the strain rate tensor associated with the dipolar perturbation induced by the swimmer located at  $j$ , namely  $\mathbf{v}^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{p}}_j = \hat{\mathbf{x}})$ .

Two important remarks can be made at this point. First we see that the stability equations now depend explicitly on the swimming speed of the particles. In addition, contrary to driven lattices, the stability of the swimmer crystals depends on the particle shape through  $\gamma$ . Therefore, we discuss below isotropic and anisotropic swimmers separately.

### 5.1 Isotropic swimmers

Isotropic particles correspond to  $\gamma = 0$ . Their dynamic equation are significantly simplified as eq. (24) is now trivial and the swimmer orientation remains constant. Since the flow is irrotational, no hydrodynamic torque (from vorticity) is present to modify the orientations of the particles. As in the previous section on driven suspensions, we look for plane waves solutions, from which we infer the form of the stability matrix  $\mathbf{M}$ . This matrix is analogous

to the one defined in eq. (10) but takes here a slightly different structure

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} M_1 & M_2 & M_5 \\ M_2 & -M_1 & M_6 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (25)$$

where  $M_1$  and  $M_2$  are given by eq. (11) and eq. (12), respectively. The two new coefficients are

$$M_5 = -i\mu \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_\theta v_x^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{x}}), \quad (26)$$

$$M_6 = -iU_0 - i\mu \sum_{j \neq i} [1 - \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij})] \partial_\theta v_y^s(\mathbf{R}_{ij}, \hat{\mathbf{x}}). \quad (27)$$

Independently of the crystal symmetry, we see that the eigenvalues of the above matrix are identical to the one we found for driven crystals,  $\omega_0 = 0$ , and  $\omega_\pm = \pm\sqrt{M_1^2 + M_2^2}$ . Therefore, crystals composed of isotropic swimmers are marginally stable and phonons propagate with the same dispersion relations as in driven lattices, albeit with different eigenmodes.

## 5.2 Anisotropic swimmers

We now explore the richer phenomenology arising from swimmer anisotropy. Generic results cannot be established in a framework as general as in the isotropic case. We proceed with the calculation under the nearest-neighbors approximation, and deal with the five Bravais lattices separately.

### 5.2.1 Square lattice

To establish the linear stability of the square crystal we compute all the coefficients of the  $\mathbf{M}$  matrix using eqs. (23) and (24) and obtain

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \begin{pmatrix} M'_1 & M'_2 & 0 \\ M'_2 & -M'_1 & M'_6 \\ 0 & M'_4 & M'_7 \end{pmatrix}, \quad (28)$$

with

$$M'_1 = \sin(q_x a), \quad (29)$$

$$M'_2 = \sin(q_y a), \quad (30)$$

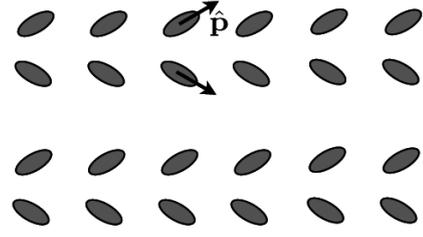
$$M'_4 = -3i \frac{\gamma}{\mu a} [\cos(q_x a) + \cos(q_y a) - 2], \quad (31)$$

$$M'_6 = -ia \left( p + \frac{1}{2} [\cos(q_y a) - \cos(q_x a)] \right), \quad (32)$$

$$M'_7 = \frac{\gamma}{\mu} \sin(q_x a), \quad (33)$$

where we introduced the dimensionless number

$$p \equiv \frac{\pi U_0 a^2}{2\mu\sigma}. \quad (34)$$



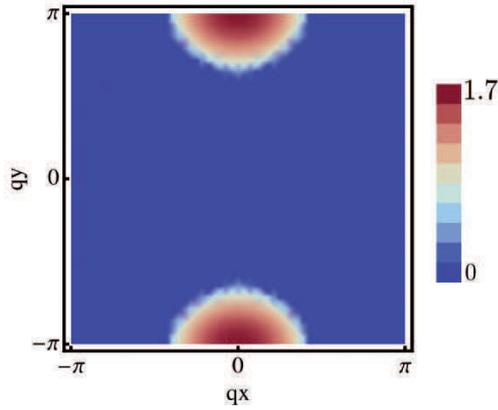
**Fig. 8.** Unstable position/orientation mode for a square lattice of active particles if the volume fraction is high enough ( $p < 1$ ). The mode is a compression along the  $y$ -direction out of phase with a splay perturbation of the particles orientation and leads to the formation of short-wavelength bands.

Differently from the driven case, the stability matrix for active particles is not characterized solely by the geometry of the lattice. The parameter  $p$  quantifies the relative magnitude of the swimming speed and the dipolar advection velocity induced by a neighboring particle. Recall that  $\sigma$  is itself a function of  $U_0$ , and of the particle shape, and  $\sigma \equiv BU_0 b^2$ , where  $B$  is a shape factor of order 1. Therefore,  $p$  scales as  $p \sim \mu^{-1}(a/b)^2$ . Large values of  $p$  correspond to the dilute limit,  $a \gg b$ , in which our far-field approach is expected to be quantitatively correct. Small values of  $p$  correspond to a dense crystal, for which our model should capture the essential physical features. The presence of  $p$  in the matrix  $\mathbf{M}$  means that the crystal stability now strongly depends on the particle volume fraction.

As even in the large- $p$  limit the eigenvalues of  $\mathbf{M}$  take a quite complex form, we proceed to consider the short- and long-wavelength excitations separately. In the limit  $q \rightarrow 0$ , the matrix  $\mathbf{M}$  has again three real eigenvalues, corresponding to three propagating modes with frequencies  $\omega_0 = 2\gamma\sigma q_x/(\pi a^2)$ , and  $\omega_\pm = \pm 2\mu\sigma q/(\pi a^2)$ . The mode  $\omega_0$  is a combination of phonons and orientation waves, whereas  $\omega_\pm$  are the phonon modes we found for driven crystals (fig. 5).

In the high- $q$  limit (small wavelengths) the phenomenology is markedly different. For wave vectors of the edge of the Brillouin zone,  $q_x = 0$  and  $q_y = \pi/a$ , we find  $\omega_0 = 0$  as well as two non-trivial modes,  $\omega_\pm = \pm \frac{2\sigma}{\pi a^3} \sqrt{6\gamma\mu(p-1)}$ . Importantly,  $\omega_\pm$  are either real or pure imaginary numbers depending on the magnitude of  $p$ . In principle,  $p > 1$  for dilute crystals, and therefore the modes  $\omega_\pm$  correspond again to a combination of phonons and orientation waves. However, we can expect our results to hold at a qualitative level for more concentrated systems, for which  $p < 1$ . In such a case, the hydrodynamic coupling destroys the square crystal structure. Specifically, the  $\omega_-$  mode is unstable. It correspond to the eigenvector  $(\delta X, \delta Y, \theta) = (0, -i \frac{\pi a^3}{6\gamma\sigma} \omega_-, 1)$ , which combines a compression along the  $y$ -axis and splay distortions of the particle orientation. In this strong hydrodynamic coupling limit, the square crystal evolves to form short-wavelength bands aligned with the average swimming direction, as sketched in fig. 8.

At second order in  $q \rightarrow 0$  and given that  $p$  is small enough, the eigenvalues  $\omega_\pm$  have a non-zero imaginary



**Fig. 9.** Normalized growth rate ( $i\omega_-$ ) of the  $(q_x, q_y)$  modes of the square lattice of active particles for  $p = 1/2$ . The parameters are  $2\mu\sigma/\pi a^2 = 1$ ,  $a = 1$  and  $\gamma/\mu = 1$ .

part which scales as  $q^2$ . These eigenvalues correspond to the roots of a 3rd-order polynomial, which has no analytical solution. Therefore, we proceed to a numerical investigation of the short-wavelength dynamics of the crystal. We compute numerically the eigenvalues of the matrix  $\mathbf{M}$  for all  $q$ 's and  $0 < p < 3$ . We find that the square crystals are indeed always unstable for  $p < 1$ . In addition the wave numbers  $q_x = 0$  and  $q_y = \pi/a$  correspond to the most unstable mode as shown in fig. 9 for  $p = 1/2$ .

### 5.2.2 Hexagonal lattice

When the lattice has hexagonal symmetry, the structure of  $\mathbf{M}$  is somewhat simplified and we obtain in this case

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \begin{pmatrix} M'_1 & 0 & \frac{\mu a^2}{6\gamma} M'_3 \\ 0 & -M'_1 & -ia p - \frac{\mu a^2}{2\gamma} M'_4 \\ M'_3 & M'_4 & \frac{\gamma}{\mu} M'_1 \end{pmatrix}, \quad (35)$$

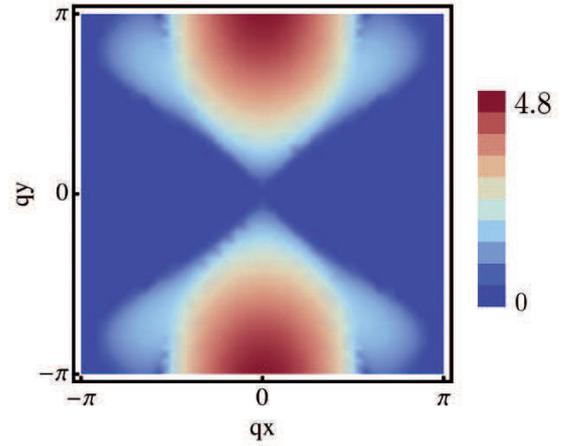
with,

$$M'_1 = \sin(q_x a) - 2 \sin(q_x a/2) \cos(\sqrt{3} q_y a/2), \quad (36)$$

$$M'_3 = i \frac{3\gamma\sqrt{3}}{\mu a} \sin(q_x a/2) \sin(\sqrt{3} q_y a/2), \quad (37)$$

$$M'_4 = 3i \frac{\gamma}{\mu a} \left[ \cos(q_x a/2) \cos(\sqrt{3} q_y a/2) - \cos(q_x a) \right]. \quad (38)$$

Similarly to the square lattice,  $\mathbf{M}$  does depend on the relative magnitude of the hydrodynamic coupling through  $p$ . The general form of the eigenvalues is too complex to yield an intuitive picture. However, the salient features correspond to small wave vectors. In this limit  $q \rightarrow 0$ , the eigenvalues of  $\mathbf{M}$  are  $\omega_0 = 0$ , and  $\omega_{\pm} = \pm \frac{\sigma}{\pi a^2} \sqrt{\frac{9}{2} \gamma \mu p (q_x^2 - q_y^2)}$ . For all values of  $p$ , there exists therefore an infinite number of unstable modes growing at a rate  $|\omega_{\pm}|$ . They correspond to perturbations in the position of



**Fig. 10.** Normalized growth rate ( $i\omega_-$ ) of the  $(q_x, q_y)$  modes of the hexagonal lattice of active particles for  $p = 5$ . The parameters are  $2\mu\sigma/\pi a^2 = 1$ ,  $a = 1$  and  $\gamma/\mu = 1$ .

the particle propagating along a direction making an angle comprised in the range  $[\pm\pi/4, \pm3\pi/4]$  with respect to  $x$ . This behavior is illustrated in fig. 10, where we show the variations of the imaginary part of  $\omega_{\pm}$  in the  $(q_x, q_y)$  plane for  $p = 5$ . We note that the most unstable mode is again a combination of compression along the  $y$ -axis and splay-like instability of the particle orientation.

### 5.2.3 Rectangular crystals

The behavior for the rectangular lattices is very similar to what we found for square lattice (within the limits of the nearest-neighbor approximation). These crystals are all stable for long wavelengths but can display short-wavelength instabilities. Denoting  $\epsilon$  the aspect ratio of the lattice cell (fig. 3), a numerical diagonalization of the stability matrix reveals that again the most unstable mode lies on the edge of the Brillouin zone in the  $y$ -direction. The associated eigenvalue is  $\omega_{\pm} = \frac{\sigma}{\pi(\epsilon a)^3} \sqrt{3\mu\gamma[(2p-1)\epsilon^2 - 1]}$ . Hence, there exists a critical value  $p_c = \frac{1}{2}(1 + \epsilon^{-2})$  such that the crystal destabilizes for  $p < p_c$ ; note that  $p_c$  is a decreasing function of the aspect ratio which plateaus at  $p = 1/2$ . Dilute crystals corresponding to high- $p$  values are stable and display phonons modes. Note that, similarly to our observation on the rectangular driven lattices, the latter result implies that dilute swimmer crystals with a rectangular symmetry are marginally stable with respect to finite amplitude stretch deformations.

### 5.2.4 Oblique and face-centered lattices

The dynamics of active crystals having oblique, or face-centered symmetries are much more complex. We here briefly highlight some interesting large-scale properties, and comment on the stability of these structures.

The stability matrix of the oblique crystals takes a simple form for the global modes only,  $q = 0$ , yet it reveals an original dynamics. Indeed for  $q = 0$  we get

$$\mathbf{M} = \frac{2\mu\sigma}{\pi a^3} \begin{pmatrix} 0 & 0 & -\frac{ia \cos(\beta) \sin(\beta)}{\epsilon^2} \\ 0 & 0 & -ipa + \frac{i \cos(2\beta)a}{2\epsilon^2} + \frac{ia}{2} \\ \frac{3\gamma i \sin(4\beta)}{\mu a \epsilon^4} & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (39)$$

where  $\beta$  is the inclination of the lattice cells and  $\epsilon$  their aspect ratio (fig. 3). Recall that the nearest-neighbor scheme restrains our analysis to weakly tilted and weakly anisotropic lattices. Beyond the  $\omega_0 = 0$  mode, the other two eigenvalues are non-zero, and we obtain

$$\omega_{\pm} = \frac{\sigma}{\pi(\epsilon a)^3} \sqrt{3\mu\gamma[\cos(2\beta) - \cos(6\beta)]}. \quad (40)$$

For weakly tilted lattices  $\beta \approx \pi/2$ , so that the frequencies are purely imaginary, and thus  $q = 0$  modes are unstable. Note that this result does not contradict the stationarity of the structure. Indeed, the orientation field is here unstable, thereby inducing a coupled translation of the lattice, as swimmers rotate.

Conversely, in the small- $q$  limit, the face-centered lattices are marginally stable for any amplitude of the hydrodynamic coupling, and phonons and orientation waves propagate in a non-dispersive manner. For small wavelengths however, and looking specifically at the combination ( $q_x = 0, q_y = \pi/\epsilon a$ ), we see that the eigenmodes corresponding to compression along the  $y$ -direction coupled to distortions of the orientation grow exponentially at a rate  $\frac{2\sigma}{\pi(\epsilon a)^3} \sqrt{3p\gamma\mu}$ . This last result implies that face-centered swimmer lattices are unstable for any amplitude of the hydrodynamic coupling.

## 6 Conclusion

In this paper we considered theoretically the dynamics and stability of both driven and active crystals. With a geometry of elongated particles under confinement we derived the dynamical system quantifying the time evolution of the particle positions and orientations and showed that all five planar Bravais lattices are stationary solutions of the equations of motion. In the case of particles passively driven by an external force, we formally demonstrated that all five lattices are always marginally stable. The phonons modes do not depend on the magnitude of the driving force but solely on the orientation and on the symmetries of the lattices. We detailed the spatial structure of the eigenmodes in the square and hexagonal geometry.

In the separate case where the particles are actively self-propelling we showed that the stability of the particle positions and orientations depends not only on the symmetry of the crystals but also on the perturbation wavelengths and the volume fraction of the crystal. We obtained that the square and rectangular lattices are linearly unstable at short wavelengths, provided the volume fraction of the crystals is high enough. Differently, hexagonal, oblique, and face-centered crystals are always unstable.

The results of our work can be compared with past theoretical studies. In the driven case, planar crystalline arrangements were shown to be hydrodynamically unstable in a three-dimensional fluid at long wavelengths [27]. The results in our paper demonstrate that confinement of the crystals, which algebraically screens hydrodynamic interactions between the particles, leads to a qualitatively different behaviors and all lattices solely support phonon modes.

In the active case, previous work demonstrated the presence of long-wavelength instabilities in orientation, density and stress (see [7,8] and references therein). In this past work, aligned suspensions for both pusher and puller swimmers were shown to be unstable in the dilute regime, and so are isotropic suspensions of pushers [10] whereas isotropic puller suspensions, which are linearly stable at zero volume fraction, were shown numerically to be unstable at high volume fraction [28]. In our paper, again because of hydrodynamic screening, the stability characteristics of confined active crystals were found to be independent of the pusher *vs.* puller nature of the self-propelled particle—the only flow singularity dictating hydrodynamic interactions in this case is the potential flow dipole whose sign is set by the swimming direction only.

This work was funded in part by the NSF (grant 0746285 to E.L.). We acknowledge support from Paris Emergence research program, and C’Nano IdF.

## References

1. S. Ramaswamy, *Adv. Phys.* **50**, 297 (2001).
2. E. Guazzelli, J. Hinch, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **43**, 97 (2011).
3. X.L. Wu, A. Libchaber, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3017 (2000).
4. C. Dombrowski, L. Cisneros, S. Chatkaew, R.E. Goldstein, J.O. Kessler, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 098103 (2004).
5. L. Cisneros, R. Cortez, C. Dombrowski, R. Goldstein, J. Kessler, *Exp. Fluids* **43**, 737 (2007).
6. A. Baskaran, M. Marchetti, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **106**, 15567 (2009).
7. S. Ramaswamy, *Annu. Rev. Condens. Matter* **1**, 323 (2010).
8. G. Subramanian, D.L. Koch, *Ann. Rev. Fluid Mech.* **43**, 637 (2011).
9. D. Saintillan, M.J. Shelley, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 058102 (2007).
10. D. Saintillan, M. Shelley, *Phys. Fluids* **20**, 123304 (2008).
11. D. Dendukuri, P.S. Doyle, *Adv. Mater* **21**, 4071 (2009).
12. M. Baron, J. Blawdziewicz, E. Wajnryb, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 174502 (2008).
13. J. Blawdziewicz, R.H. Goodman, N. Khurana, E. Wajnryb, Y.N. Young, *Physica D* **239**, 1214 (2010).
14. T. Beatus, T. Tlusty, R. Bar-Ziv, *Nat. Phys.* **2**, 743 (2006).
15. M. Hashimoto, B. Mayers, P. Garstecki, G. Whitesides, *Small* **2**, 1292 (2006).

16. J. Howse, R. Jones, A. Ryan, T. Gough, R. Vafabakhsh, R. Golestanian, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 048102 (2007).
17. W.F. Paxton, K.C. Kistler, C.C. Olmeda, A. Sen, S.K.S. Angelo, Y. Cao, T.E. Mallouk, P.E. Lammert, V.H. Crespi, *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 13424 (2004).
18. S. Thutupalli, R. Seemann, S. Herminghaus, *New J. Phys.* **13**, 073021 (2011).
19. D. Saintillan, M.J. Shelley, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 178103 (2008).
20. G.K. Batchelor, *An Introduction to Fluid Dynamics* (Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1967).
21. T. Beatus, R. Bar-Ziv, T. Tlusty, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 124502 (2007).
22. G.B. Jeffery, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **102**, 161 (1922).
23. N. Liron, S. Mochon, *J. Eng. Mech.* **10**, 287 (1976).
24. D. Long, A. Ajdari, *Eur. Phys. J. E* **4**, 29 (2001).
25. E. Lauga, T. Powers, *Rep. Prog. Phys.* **72**, 096601 (2009).
26. A. Baskaran, M. Marchetti, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **106**, 15567 (2009).
27. J. Crowley, *Phys. Fluids* **19**, 1296 (1976).
28. A.A. Evans, T. Ishikawa, T. Yamaguchi, E. Lauga, *Phys. Fluids* **23**, 111702 (2011).

## Un nouveau mécanisme de propulsion : l'électro-rotation de Quincke

Dans ce chapitre, je présente le mécanisme de propulsion original que nous avons mis au point et utilisé dans l'équipe pour étudier des ensembles de particules auto-propulsées en interaction. La propulsion des particules est assurée par un mécanisme d'électro-hydrodynamique, découvert en 1896 mais tombé dans un relatif oubli, appelé l'électro-rotation de Quincke [46, 69]. Avant de passer à la dynamique collective de larges assemblées de particules dans les chapitres suivants, je présente ici une caractérisation de la dynamique individuelle des particules auto-propulsées.

### 5.1 L'électro-rotation de Quincke

Le mécanisme de propulsion original utilisé dans ce travail de thèse repose sur un effet électro-hydrodynamique découvert par le physicien Georg Hermann Quincke en 1896 [46]. Cet effet, l'électro-rotation de Quincke, n'a été que peu étudié et utilisé depuis sa découverte [69, 70]. Ici, nous présentons son utilisation pour la propulsion de colloïdes dans une solution. Avant de passer à l'explication détaillée de la rotation de Quincke, résumons en quelques lignes cet effet pour les lecteurs ou lectrices qui ne souhaiteraient pas entrer dans les détails quelque peu fastidieux.

#### 5.1.1 Description qualitative de l'électro-rotation de Quincke

L'électro-rotation de Quincke consiste en la mise en rotation par un champ électrique d'une particule isolante plongée dans un liquide conducteur (Fig. 5.1). Nous verrons que

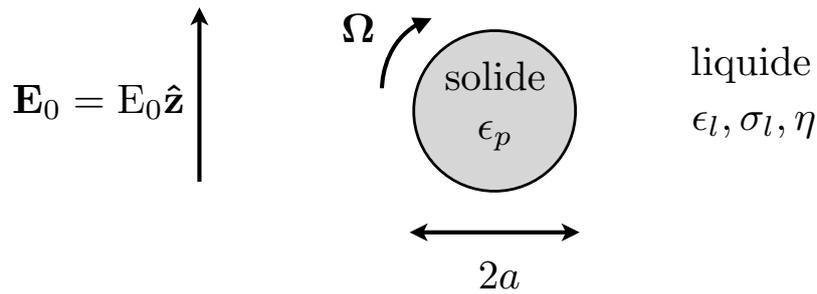


FIGURE 5.1: Une particule isolante est plongée dans un liquide conducteur. Si on applique un champ électrique au système, la particule peut, sous certaines conditions, être mise en rotation.

L'axe de rotation de la particule se trouve dans le plan orthogonal au champ électrique, et que la direction de cet axe dans le plan est déterminée par une brisure spontanée de symétrie. En bref, le champ électrique extérieur impose une distribution de charges de surface à l'interface entre le liquide conducteur et la particule isolante. Cette distribution se traduit par l'apparition d'un moment dipolaire pour la particule dans la direction opposée au champ (Fig. 5.2). Si, à cause d'une fluctuation par exemple, le moment dipolaire dévie de l'axe du champ électrique, ce dernier impose un couple électrique qui tend à aligner le moment dipolaire de la particule avec le champ. Pour des valeurs de champ au dessus d'une valeur critique, le moment dipolaire dans le régime stationnaire est incliné par rapport à l'axe du champ électrique (Fig. 5.2). Cela résulte de l'équilibre entre l'advection des charges dans le liquide et l'advection des charges de surface par la particule en rotation, et de l'équilibre des couples (électrostatique et visqueux). La direction d'inclinaison du moment dipolaire est fixée par la direction de la fluctuation initialement amplifiée. C'est une brisure spontanée de symétrie. Puisque dans le régime stationnaire, l'axe du moment dipolaire est incliné par rapport au champ, le couple électrique maintient la particule en rotation. L'axe de cette rotation est dans le plan orthogonal au champ et sa direction résulte de la brisure spontanée de symétrie initiale. C'est ce qu'on appelle l'électro-rotation de Quincke.

### 5.1.2 Description quantitative de l'électro-rotation de Quincke

Je présente ici un résumé de la démonstration de l'émergence de l'électro-rotation de Quincke. Plus de détails sont disponibles dans les références [46, 69]. Considérons une particule sphérique isolante de rayon  $a$ , située en  $\mathbf{r} = \mathbf{0}$ , et composée d'un matériau de permittivité électrique  $\epsilon_p$ . La particule est plongée dans un liquide conducteur de conductivité électrique  $\sigma_l$ , de permittivité électrique  $\epsilon_l$  et de viscosité  $\eta$ . On applique au système un champ électrique vertical uniforme  $\mathbf{E} = E_0 \hat{\mathbf{z}}$  (Fig. 5.1).

Après un court régime transitoire, la distribution de charges relaxe à 0 dans le liquide excepté au niveau de l'interface entre la particule et le liquide où les discontinuités de permittivités et de conductivités induisent une distribution de charges non nulle (Fig. 5.2). En effet, en appliquant le théorème de Gauss à une section infiniment petite de la surface, on obtient la distribution de charges à l'interface :

$$q_s = (\epsilon_l \mathbf{E}^l - \epsilon_p \mathbf{E}^p) \cdot \hat{\mathbf{r}}|_{r=a} \quad (5.1)$$

où  $\mathbf{E}^l$  (resp.  $\mathbf{E}^p$ ) est le champ électrique dans le liquide (resp. la particule). Les solutions des équations de Maxwell dans cette géométrie prennent la forme :

$$\begin{cases} \mathbf{E}^p = \mathbf{E}_0 - \frac{\mathbf{P}}{4\pi\epsilon_0 a^3} & \text{dans la particule } (r < a) \\ \mathbf{E}^l = \mathbf{E}_0 + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( 3 \frac{\mathbf{P} \cdot \mathbf{e}_r}{r^3} \mathbf{e}_r - \frac{\mathbf{P}}{r^3} \right) & \text{dans le liquide } (r > a) \end{cases} \quad (5.2)$$

Il s'agit simplement de la somme du champ  $\mathbf{E}_0$  et du champ créé par une sphère de polarisation uniforme  $\mathbf{p} = \frac{\mathbf{P}}{(4/3)\pi a^3}$  où  $\mathbf{P}$  est le moment dipolaire total porté par la particule et l'interface particule/liquide (Fig. 5.2).

Pour établir la dépendance de  $\mathbf{P}$  en  $\mathbf{E}_0$ , on utilise l'équation de conservation de la charge à l'interface particule/liquide :

$$\partial_t q_s + \nabla_s \cdot \mathbf{j}_s = 0 \quad (5.3)$$

où  $\nabla_s$  est l'opérateur de divergence surfacique et  $\mathbf{j}_s$  est le courant à l'interface. Ce courant doit tenir compte à la fois de la conduction ohmique dans le liquide et de l'advection des

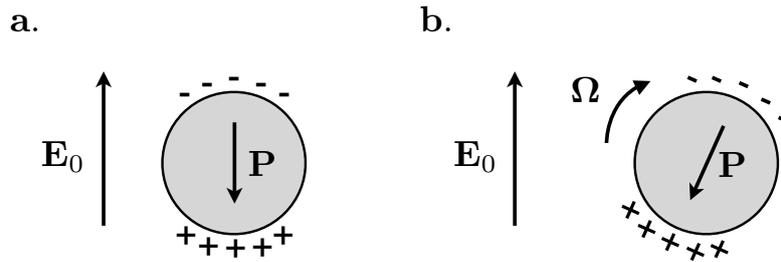


FIGURE 5.2: Illustration de l'électro-rotation de Quincke. **a.** À l'application du champ électrique, des charges s'accumulent à l'interface particule/liquide et créent une distribution de charge dipolaire. Pour  $E_0 < E_Q$ , la conductivité de la solution suffit à stabiliser le dipôle dans la direction opposée au champ. **b.** Pour  $E_0 > E_Q$ , la compétition entre l'advection des charges par la rotation de la particule et le transport de charges dans le liquide conducteur conduit à une situation stationnaire où la polarisation est inclinée par rapport à l'axe du champ. Le couple électrique maintient la particule en rotation, c'est ce qu'on appelle l'électro-rotation de Quincke.

charges à l'interface par la rotation éventuelle de la particule. On écrit donc :

$$\mathbf{j}_s = \sigma_l \mathbf{E}_l + q_s \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{a}\hat{\mathbf{r}} \quad (5.4)$$

où  $\boldsymbol{\Omega}$  est la vitesse angulaire éventuelle de la particule. En exprimant  $q_s$  et  $\mathbf{j}_s$  en fonction de  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{E}_0$ , on obtient l'équation d'évolution suivante pour le moment dipolaire de la particule :

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} + \frac{1}{\tau} \mathbf{P} = -\frac{1}{2} 2\pi\epsilon_0 a^3 \mathbf{E}_0 + \boldsymbol{\Omega} \times (\mathbf{P} - 4\pi\epsilon_0 a^3 \chi^\infty \mathbf{E}_0) \quad (5.5)$$

avec  $\chi^\infty \equiv \frac{\epsilon_p - \epsilon_l}{\epsilon_p + 2\epsilon_l}$  et  $\tau \equiv \frac{\epsilon_p + 2\epsilon_l}{2\sigma_l}$ . Pour mieux comprendre cette équation, on peut séparer la polarisation totale en deux contributions. La première est constante,  $\mathbf{P}^e \equiv 4\pi\epsilon_0 a^3 \chi^\infty \mathbf{E}_0$ , et correspond à la réponse diélectrique instantanée due à la discontinuité des permittivités à l'interface. La seconde,  $\mathbf{P}^\sigma \equiv \mathbf{P} - \mathbf{P}^e$ , est dynamique et correspond au transport des charges dans la solution à l'interface (à la fois du fait de la conductivité ionique de la solution et du transport de charges par advection par la particule en rotation). Ce que nous voulons maintenant montrer, c'est que la compétition entre l'advection des charges par le mouvement de rotation de la particule, et la relaxation vers une polarisation orientée selon  $-\mathbf{E}_0$  due au transport des charges dans le fluide, peut mener à une situation stationnaire où l'orientation de la polarisation  $\mathbf{P}$  a un angle fini par rapport à  $\mathbf{E}_0$ , ce qui maintient la particule en rotation à cause du couple électrique qui s'exerce alors sur la particule (Fig. 5.2). Pour montrer cela, nous devons fermer l'équation Eq. 5.5 en donnant l'expression de la vitesse angulaire  $\boldsymbol{\Omega}$  en fonction de  $\mathbf{P}$ . On introduit alors le couple électrique  $\mathbf{T}$  subi par la particule via sa charge de surface, dont on peut montrer qu'il vaut [71] :

$$\mathbf{T} = \frac{\epsilon_l}{\epsilon_0} \mathbf{P} \times \mathbf{E}_0 \quad (5.6)$$

Puisque l'on s'intéresse dans la suite à des particules colloïdales, on peut négliger l'inertie de la particule. Cela nécessite d'équilibrer le couple électrique avec le couple résistant exercé par le fluide visqueux sur la particule :

$$\frac{\epsilon_l}{\epsilon_0} \mathbf{P} \times \mathbf{E}_0 - 8\pi a^3 \eta \boldsymbol{\Omega} = \mathbf{0} \quad (5.7)$$

ce qui fournit la relation recherchée entre  $\mathbf{P}$  et  $\boldsymbol{\Omega}$ . On peut maintenant chercher des solutions stationnaires des équations 5.5 et 5.7 avec  $\boldsymbol{\Omega}$  non nulle. Dans la situation où  $\chi^\infty + \frac{1}{2} > 0$  et où le champ extérieur  $\mathbf{E}_0$  excède une certaine valeur seuil  $\mathbf{E}_Q = [\epsilon_l \tau (\chi^\infty + 1/2) / (2\eta)]^{-1/2}$ , on montre aisément qu'il y a deux solutions stationnaires [71]. La première correspond à  $\boldsymbol{\Omega} = \mathbf{0}$  et  $\mathbf{P}$  alignée suivant  $-\mathbf{E}_0$ . Elle est instable par rapport aux perturbations orientationnelles de  $\mathbf{P}$ . La seconde est stable et correspond à une rotation à vitesse angulaire constante

$$\boldsymbol{\Omega} = \frac{1}{\tau} \sqrt{\left(\frac{E_0}{E_Q}\right)^2 - 1} \quad (5.8)$$

La polarisation est constante mais son orientation fait un angle non nul avec la direction du champ extérieur. La rotation se fait selon un axe orthogonal à  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{E}_0$ . Cet axe émerge d'une brisure spontanée de symétrie (fluctuation initiale de l'orientation de  $\mathbf{P}$  par rapport à la direction du champ extérieur) et peut donc a priori prendre n'importe quelle direction dans le plan orthogonal à  $\mathbf{E}_0$ . Cette rotation est appelée l'électro-rotation de Quincke.

## 5.2 Rouleurs colloïdaux

### 5.2.1 Principe de propulsion

Pour utiliser l'électro-rotation de Quincke comme moyen de propulsion pour des colloïdes, on fait appel à un principe vieux de plusieurs milliers d'années, la roue. Si notre particule en rotation se situe au dessus d'une paroi solide et que le contact avec celle-ci est sec ou lubrifié, le mouvement de rotation de la particule est converti en un mouvement de translation (Fig. 5.3). L'idée est donc de laisser sédimenter puis de faire rouler les particules sur l'une des deux électrodes qui servent à appliquer le champ  $\mathbf{E}_0$ . Pour amener les particules sur l'anode, on peut également utiliser le fait que les particules possèdent une charge négative résiduelle qui permet de les transporter par électrophorèse.

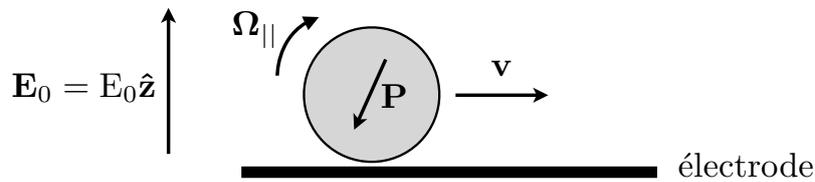


FIGURE 5.3: Lorsque la particule est au contact d'une paroi qui exerce sur elle un frottement, le mouvement de rotation génère une translation de la particule. Cette translation se fait à vitesse constante. Elle est de même direction mais de sens opposé à la composante planaire de la polarisation.

Dans le cas d'un frottement sans glissement des particules sur l'électrode, et en supposant que le voisinage de l'électrode ne perturbe pas le champ électrique au niveau de la particule, on obtiendrait facilement la vitesse de translation de nos particules :

$$v_0 = a\Omega = \frac{a}{\tau} \sqrt{\left(\frac{E_0}{E_Q}\right)^2 - 1} \quad (5.9)$$

Cependant, le contact entre les particules et l'électrode est lubrifié par le fluide environnant ce qui conduit à une condition mixte de frottement avec glissement. De plus, la condition d'équipotentialité à la surface de l'électrode perturbe également le champ électrique. Il faut maintenant tenir compte de cette nouvelle condition aux limites en considérant la distribution de charge image par rapport à l'électrode. Au contact de l'électrode, la particule est

soumise à un champ électrique non uniforme. Tenir compte de ces éléments pour trouver une estimation plus réaliste de la vitesse de translation des particules est assez difficile. Ce travail a été réalisé par Jean-Baptiste Caussin, également doctorant avec Denis Bartolo. Nous donnons ici uniquement les grandes lignes du calcul. Le lecteur ou la lectrice qui voudrait plus de détails sur ce calcul peut consulter le document complémentaire de [71]. Les vitesses de rotation et de translation de la particule sont reliées aux forces et couples électriques exercés sur la particule via la matrice de mobilité  $\mathcal{M}$  :

$$\begin{pmatrix} \frac{1}{a}\mathbf{v} \\ \boldsymbol{\Omega}_{\parallel} \\ \boldsymbol{\Omega}_{\perp} \end{pmatrix} = \mathcal{M} \cdot \begin{pmatrix} a\mathbf{F}_{\parallel}^e \\ \mathbf{T}_{\parallel}^e \\ T_{\perp}^e \end{pmatrix} \quad (5.10)$$

où l'on distingue maintenant les composantes dans le plan parallèle à l'électrode et la composante suivant  $z$ . La matrice de mobilité  $\mathcal{M}$  est non-diagonale et s'écrit :

$$\mathcal{M} = \begin{pmatrix} \mu_t \mathbf{I} & \tilde{\mu}_t \boldsymbol{\Lambda} & 0 \\ -\tilde{\mu}_r \boldsymbol{\Lambda} & \mu_r \mathbf{I} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{\perp} \end{pmatrix} \quad (5.11)$$

où  $\boldsymbol{\Lambda} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix}$ .  $\mu_t$  et  $\mu_r$  sont des coefficients hydrodynamiques qui décrivent le mouvement de la particule sous l'action des forces et des couples électriques en l'absence de parois. Les coefficients  $\tilde{\mu}_t$  et  $\tilde{\mu}_r$  sont dus à la présence de la paroi et couplent le mouvement rotationnel avec le mouvement translationnel. Pour calculer ces coefficients, on suppose que la distance entre la particule et l'électrode est faible devant le rayon de la particule, ce qui nous place dans l'approximation de lubrification. Nous ne sommes pas capables de mesurer précisément cette distance mais cela n'affectera que peu les valeurs finales des coefficients qui dépendent seulement logarithmiquement de cette distance [72, 73, 74, 75]. Aussi, Jean-Baptiste a montré que la correction au champ électrique  $\delta\mathbf{E}$  créée par la distribution image de charges a une faible amplitude par rapport au champ imposé. On peut alors effectuer un traitement perturbatif en  $\delta\mathbf{E}/\mathbf{E}_0$ . Les principaux résultats qu'on obtient alors sont :

- La surface n'induit pas de force tangentielle,  $\mathbf{F}_{\parallel}^e = \mathbf{0}$ , ni de couple perpendiculaire,  $T_z^e = 0$  sur la particule et ce à tout ordre en  $\delta\mathbf{E}/\mathbf{E}_0$ . En effet, cela découle d'arguments de symétrie sur les distributions de charges par rapport à l'électrode.
- Quand  $E_0 > E_Q$ , la vitesse de translation de la particule est proportionnelle à la composante planaire du moment dipolaire mais de sens opposé  $\mathbf{v} \propto -\mathbf{P}$ . Son amplitude est donnée par

$$v_0 = \frac{a\tilde{\mu}_t}{\mu_r\tau} \sqrt{\left(\frac{E_0}{E_Q}\right)^2 - 1} \quad (5.12)$$

On peut montrer que dans l'approximation de lubrification le rapport  $\tilde{\mu}_t/\mu_r$  est de l'ordre de un. La vitesse de translation est donc finalement proche de celle que l'on aurait pour une condition de frottement sans glissement.

### 5.2.2 Quelques ordres de grandeur

Dans la suite de ce chapitre, nous présentons quelques résultats sur la dynamique individuelle des rouleurs sans entrer dans le détail du design des expériences. Le dispositif expérimental sera décrit avec précision dans le chapitre suivant. Mentionnons simplement le fait que nos rouleurs sont des colloïdes en PMMA de rayon  $a = 2.4 \mu\text{m}$ . Leur permittivité est de l'ordre de  $\epsilon_p \sim 2.6 \epsilon_0$ . Ils sont plongés dans une solution d'hexadécane dans laquelle on dilue un peu de sel pour apporter des porteurs de charge. La viscosité de cette solution est proche de celle de l'hexadécane, c'est-à-dire  $\eta \sim 3 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ . Sa permittivité est de l'ordre de  $\epsilon_l \sim 2 \epsilon_0$  et le temps de relaxation des charges dans le liquide est de l'ordre de  $\tau \sim 1 \text{ ms}$  [70]. Les rouleurs et la solution sont injectés dans des dispositifs microfluidiques dont la hauteur varie entre  $H = 110 \mu\text{m}$  et  $H = 220 \mu\text{m}$ . Après injection, on laisse les colloïdes sédimenter sur la paroi du bas qui est aussi une des deux électrodes utilisées pour appliquer le champ électrique.

Avec ces paramètres, on peut calculer un ordre de grandeur du champ électrique seuil nécessaire pour déclencher la rotation de Quincke [71]. On trouve que  $E_Q \sim 10^6 \text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$  ce qui conduit à appliquer des tensions de l'ordre de quelques centaines de volts sur nos électrodes. Le taux de rotation des rouleurs est de l'ordre de  $\Omega \sim 1000 \text{ Hz}$  ce qui donne des vitesses de translation de l'ordre de  $v_0 \sim 1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$  soit environ 200 diamètres par seconde. Cette vitesse très importante des rouleurs va nous contraindre pour le choix des méthodes d'observation, d'acquisition des données et de traitement des données (voir chapitre suivant).

Grandeur	Ordre de grandeur
Rayon des rouleurs : $a$	$2.4 \mu\text{m}$
Distance entre les électrodes : $H$	$110\text{-}220 \mu\text{m}$
Champ électrique appliqué : $E_0$	$10^6 \text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$
Taux de rotation des rouleurs : $\Omega$	$1000\text{Hz}$
Vitesse des rouleurs : $v_0$	$1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ $200 \text{ diamètres}\cdot\text{s}^{-1}$

TABLE 5.1: Tableau récapitulatif de quelques ordres de grandeur relatifs à la propulsion par l'électro-rotation de Quincke dans nos dispositifs.

## 5.3 Caractérisation de la dynamique individuelle des rouleurs

Dans un premier temps, on cherche à caractériser la dynamique d'un rouleur isolé. Cela nous permet de vérifier que le mécanisme de propulsion qui génère le déplacement de nos colloïdes est bien l'électro-rotation de Quincke, et d'établir les propriétés de ce nouveau

mode de propulsion. Notons ici que les détails sur le montage expérimental seront donnés au chapitre suivant.

### 5.3.1 Vitesse et orientation

Décrivons tout d'abord brièvement ce que l'on peut observer dans une expérience avec une solution contenant peu de colloïdes (phase diluée). On injecte la solution conductrice et les colloïdes dans un dispositif microfluidique. La paroi inférieure du canal est une électrode reliée à la sortie d'un générateur de tension. La paroi supérieure est une électrode reliée à la terre. On applique dans un premier temps un champ électrique  $E_0$  faible entre les deux électrodes. On remarque que les colloïdes sont attirés vers l'électrode positive. Cela est dû au fait que les colloïdes possèdent une charge résiduelle négative suite au processus de lavage décrit dans le chapitre suivant. Si maintenant on augmente le champ électrique, au dessus d'un certain seuil, on observe que les colloïdes se déplacent à la surface de l'électrode positive. La vitesse de translation des particules est élevée et il semble que l'orientation des vitesses soit aléatoire (vidéo disponible à l'adresse suivante : <http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/IsotropicGaz.mov>). Ces premières observations semblent coller avec le fait que l'électro-rotation de Quincke soit à l'origine de la propulsion de nos colloïdes.

Dans la section précédente, nous avons établi plusieurs prédictions relatives à la propulsion par l'électro-rotation de Quincke. Premièrement, l'amplitude de la vitesse doit être la même pour toutes les particules étant donné que le mécanisme de propulsion est le même et que toutes les particules ont les mêmes propriétés. De plus, l'orientation des rouleurs doit être choisie de manière aléatoire et uniforme dans le plan de déplacement. Cela provient du fait que la rotation de Quincke émerge d'une brisure spontanée de symétrie qui impose la direction de translation de la particule. La figure Fig. 5.4 montre une mesure de la distribution de probabilité de la norme et de l'orientation de la vitesse de rouleurs dans des phases très diluées où les rouleurs n'interagissent presque pas entre eux (fractions surfaciques en colloïdes comprises entre  $10^{-4}$  et  $10^{-3}$ ). On observe que les particules ont bien toutes la même vitesse mais que leur orientation est choisie de manière aléatoire et uniforme dans le plan.

Dans la section précédente, nous avons également montré que la vitesse des rouleurs doit être très importante, de l'ordre du  $\text{mm.s}^{-1}$ , et que sa dépendance au champ électrique appliqué vérifie la relation :

$$v_0 = \alpha \frac{a}{\tau} \sqrt{\left(\frac{E_0}{E_Q}\right)^2 - 1} \quad (5.13)$$

où  $\alpha$  est une constante sans dimension de l'ordre de 1,  $a = 2.4 \mu\text{m}$  est le rayon des particules,  $\tau \equiv 1 \text{ mm.s}^{-1}$  est le temps de relaxation des charges dans le liquide,  $E_0$  est la norme

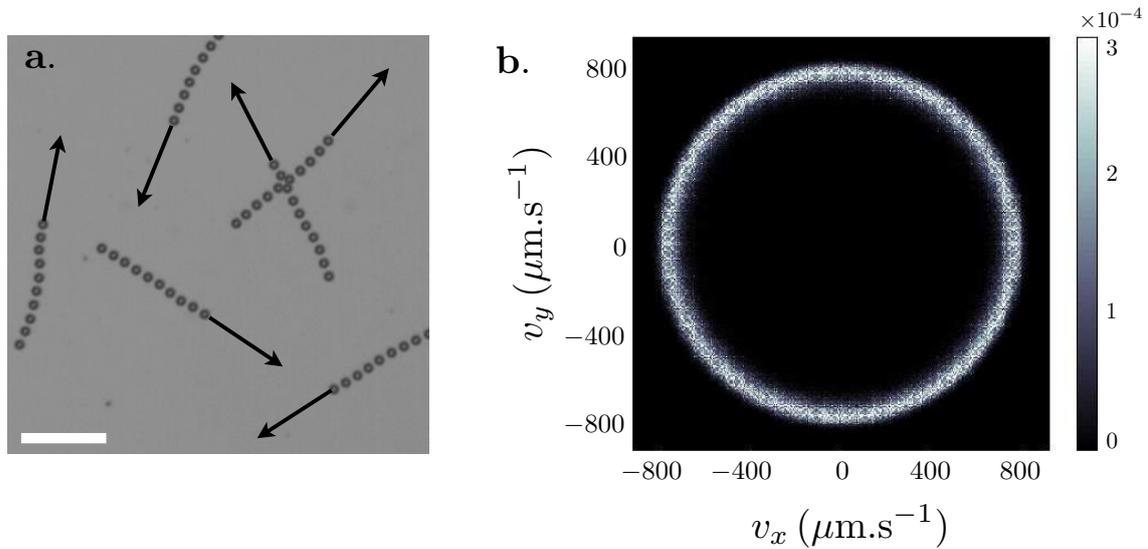


FIGURE 5.4: Mouvement isotrope des particules. **a.** Superposition de dix images espacées de 10 ms. Les flèches représentent l'orientation de la vitesse instantanée des rouleurs. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$ . **b.** Distribution de probabilité de la vitesse des rouleurs dans une phase très diluée où les rouleurs sont considérés comme indépendants. Cette distribution de probabilité agrège plus de  $2 \times 10^6$  mesures de vitesse instantanée.

du champ appliqué, et  $E_Q$  est le champ seuil de la rotation de Quincke.

En faisant varier le champ électrique imposé, nous avons vérifié que la vitesse de nos rouleurs se comporte bien de la manière attendue (Fig. 5.5). Au vu de ces résultats : vitesse très importante des colloïdes, orientation choisie de manière aléatoire et uniforme, et dépendance en champ en accord avec la prédiction de l'équation Eq. 5.13, on peut conclure sans aucun doute que le mécanisme de propulsion de nos particules est bien l'électro-rotation de Quincke.

Il est important de noter que ces propriétés sont vérifiées pour une gamme de champ électrique relativement restreinte :  $1.1 \leq (E_0/E_Q) \leq 2.5$ . Quand le champ électrique est inférieur au champ seuil de l'effet Quincke,  $E_0 < E_Q$ , l'électro-rotation de Quincke n'a pas lieu et les particules sont quasiment immobiles (elles peuvent se déplacer légèrement à cause d'effets d'électro-hydrodynamique). Pour  $E_0 \sim E_Q$ , on observe que certaines particules se mettent à se déplacer à la surface de l'électrode tandis que d'autres ont une dynamique tridimensionnelle et forment temporairement des chaînes verticales. Cela est dû à la compétition entre des effets électrostatiques (interactions dipôle-dipôle) et l'électro-rotation de Quincke. Pour  $1.1 \leq (E_0/E_Q) \leq 2.5$ , toutes les particules sont en mouvement de translation. C'est le régime où l'électro-rotation de Quincke domine la dynamique. Pour  $E_0 \sim 3E_Q$ , un autre effet que nous ne comprenons pas complètement apparaît. Les particules s'immobilisent et occupent tout l'espace. La distance entre les particules est à peu

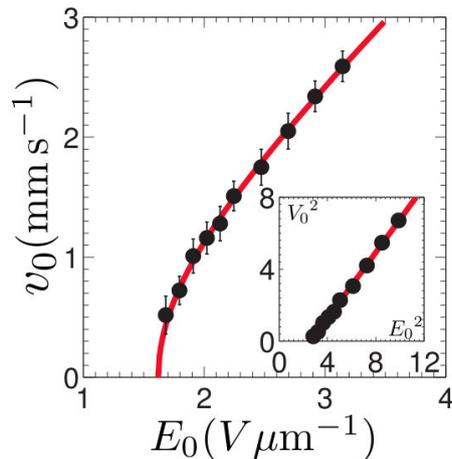


FIGURE 5.5: Vitesse des rouleurs en fonction du champ électrique appliqué. Les barres d'erreurs représentent l'écart type des mesures. La courbe rouge correspond à un ajustement par la prédiction théorique Eq.5.13. En insert, la même figure pour le carré des quantités considérées. La théorie prévoit alors une variation linéaire.

près constante et la densité semble homogène à grande échelle (voir Fig. 5.6). Les particules sont comme piégées dans des puits de potentiel et elles oscillent légèrement autour de leurs positions d'équilibre. Nous n'avons pas cherché à comprendre en détail les causes de ce comportement mais on peut faire l'hypothèse qu'il résulte d'un couplage entre des effets électrostatiques et les flux hydrodynamiques générés par la présence des particules à la surface de l'électrode [76, 77].

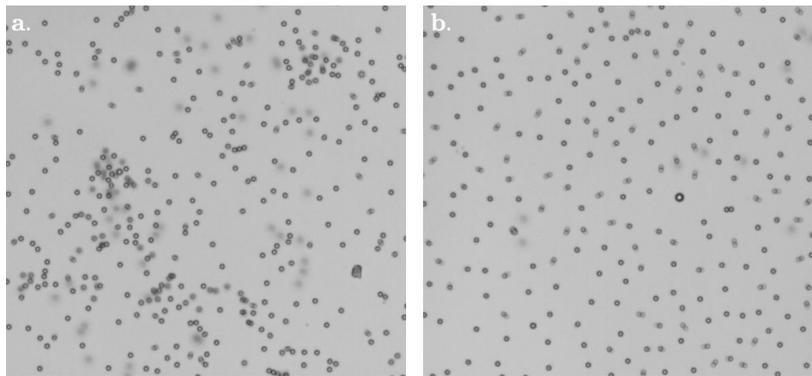


FIGURE 5.6: Limites pratiques des valeurs accessibles pour le champ électrique. **a.** Image prise à un champ électrique juste au-dessus du champ critique,  $E_0 \sim E_Q$ . Certains colloïdes roulent sur l'électrode alors que d'autres forment des chaînes verticales ayant une dynamique tridimensionnelle. **b.** Image prise à un champ électrique bien au-dessus du champ critique,  $E_0 \sim 3E_Q$ . Les rouleurs sont piégés. Leurs positions oscillent rapidement sur une distance de l'ordre d'un diamètre de particule.

Dans les expériences présentées dans la suite, nous limitons la gamme de champ utilisé à  $1.1 \leq (E_0/E_Q) \leq 2$ . On préférera se placer à des champs plutôt faibles où la vitesse des colloïdes est moins importante. Cela facilitera en effet l'acquisition et le traitement des données.

### 5.3.2 Déplacement quadratique moyen et temps de diffusion

En théorie, un rouleur isolé devrait avoir une trajectoire rectiligne. En pratique, l'orientation de la vitesse des rouleurs est bien sûr soumise à des perturbations : défauts à la surface de l'électrode, interactions avec d'autres rouleurs, diffusion brownienne, ... Néanmoins, on observe que l'orientation de la vitesse de nos rouleurs colloïdaux est plutôt stable (voir Fig. 5.7), et ce malgré le fait qu'ils ne possèdent pas d'inertie mécanique. Le coefficient de diffusion rotationnelle de la vitesse semble donc plutôt faible. Puisque les rouleurs ont une vitesse dont l'amplitude est constante, ils peuvent être considérés, sur des temps longs, comme des marcheurs aléatoires persistants. On peut décrire leur dynamique individuelle à l'aide de deux paramètres : leur vitesse  $v_0$  et leur coefficient de diffusion rotationnelle  $D$ . Les équations d'évolution de la position et de l'orientation d'une particule sont alors :

$$\dot{\mathbf{r}}(t) = v_0 \mathbf{p}(\theta(t)) \quad (5.14)$$

et

$$\dot{\theta} = \xi \quad (5.15)$$

où  $\mathbf{p}(\theta)$  est le vecteur unitaire définissant l'orientation de la vitesse de la particule, et qui fait un angle  $\theta$  avec l'axe des  $x$ .  $\xi$  est un bruit blanc gaussien de moyenne nulle et de variance  $\langle \xi(t)\xi(t') \rangle = 2D\delta(t-t')$ .  $D$  est le coefficient de diffusion de l'orientation de la vitesse. Le déplacement quadratique moyen des particules s'exprime alors [78] :

$$\begin{aligned} \langle r^2(\Delta t) \rangle &= \langle [x(t+\Delta t) - x(t)]^2 \rangle + \langle [y(t+\Delta t) - y(t)]^2 \rangle \\ &= \left(\frac{v_0}{D}\right)^2 [D\Delta t - 1 + \exp(-D\Delta t)] \end{aligned} \quad (5.16)$$

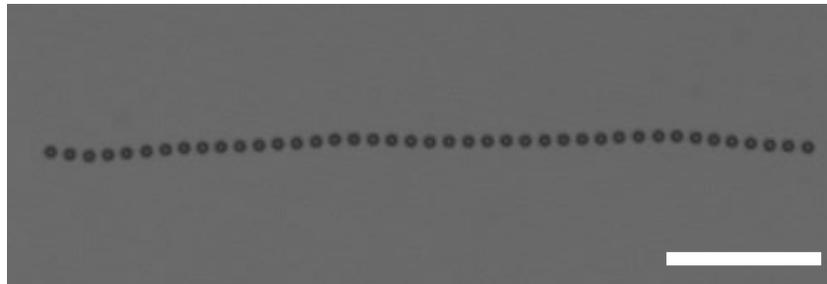


FIGURE 5.7: Trajectoire rectiligne d'un rouleur de Quincke isolé. Superposition de 40 images espacées de 10 ms. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$ .

où  $\langle \cdot \rangle$  désigne une moyenne temporelle et d'ensemble. La figure Fig. 5.8 a. montre une mesure de la racine carrée du déplacement quadratique moyen pour un champ électrique tel que  $E_0/E_Q = 1.43$ . Les premiers points à  $\Delta t$  petits, où la trajectoire est balistique, permettent de déterminer  $v_0$ . On obtient ensuite la valeur du coefficient de diffusion rotationnelle des rouleurs en ajustant l'expression Eq. 5.16 à la courbe du déplacement quadratique moyen. Dans la figure Fig. 5.8, on observe que le déplacement quadratique moyen dévie bien du comportement balistique, le coefficient de diffusion est non nul et vaut  $D = 0.77 \text{ s}^{-1}$ .

On peut également déterminer le coefficient de diffusion rotationnelle en regardant l'autocorrélation de la vitesse (voir Fig. 5.8 b.). En effet, on montre facilement que celle-ci décroît de manière exponentielle avec un taux de décroissance égal au coefficient de diffusion rotationnelle. Un ajustement de la courbe d'autocorrélation de la vitesse donne une valeur du coefficient de diffusion rotationnelle identique à celle obtenue à partir du déplacement quadratique moyen. On peut noter que l'effondrement de la courbe d'autocorrélation au dessus de  $\Delta t = 0.7 \text{ s}$  est dû à la taille finie de la fenêtre d'observation.

Il est intéressant de mesurer le coefficient de diffusion rotationnelle des rouleurs en fonction du champ électrique appliqué. En effet, quand on fait croître le champ, la vitesse des particules augmente ce qui implique qu'elles parcourent des distances plus grandes en un temps donné. Si la diffusion orientationnelle des particules est due principalement à des défauts

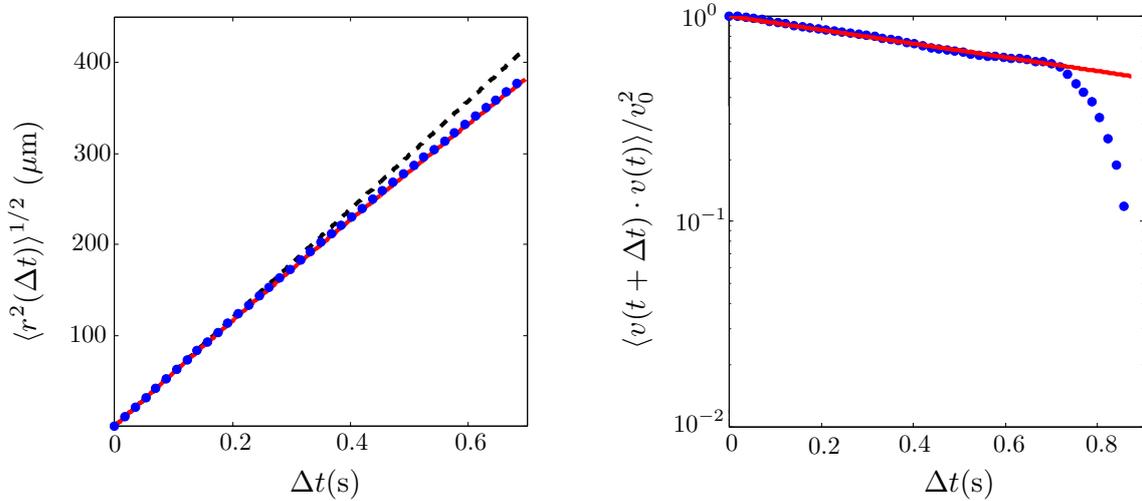


FIGURE 5.8: Racine carrée du déplacement quadratique moyen et autocorrélation de la vitesse. **a.** Racine carrée du déplacement quadratique moyen en fonction de l'écart temporel pour une expérience où  $E_0/E_Q = 1.43$ . La courbe rouge représente un ajustement par la formule Eq. 5.16 avec  $v_0 = 596 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $D = 0.77 \text{ s}^{-1}$ . La courbe en pointillés noirs indique le régime purement balistique. **b.** Autocorrélation de la vitesse pour la même expérience. La courbe rouge correspond à une décroissance exponentielle des corrélations avec une constante de temps  $1/D$  où  $D = 0.77 \text{ s}^{-1}$ .

sur l'électrode, ou à des défauts de sphéricité des particules, on s'attend à voir augmenter le taux de diffusion avec le champ. La figure Fig. 5.9 a. montre le temps de persistance (l'inverse du coefficient de diffusion) en fonction du champ appliqué. On constate que le temps de persistance reste sensiblement constant. La longueur de persistance  $l_p = v_0/D$ , Fig. 5.9 b., augmente avec le champ puisque la vitesse des colloïdes augmente et que le taux de diffusion reste le même. Le fait que le temps de persistance reste constant nous indique que la diffusion orientationnelle des rouleurs n'est pas due à la présence de défauts à la surface de l'électrode. Aussi, on peut vraisemblablement exclure les interactions entre particules comme source principale de diffusion (dans le régime dilué) puisque à fraction surfacique fixée, le taux de "collision" entre particules augmente avec la vitesse. On s'attendrait donc à voir le temps de persistance diminuer quand on augmente le champ. Enfin, on peut exclure les défauts de sphéricité des particules comme source de diffusion puisqu'on s'attendrait de même à ce que la diffusion augmente alors avec la vitesse. Une fois exclus ces mécanismes de diffusion, on peut faire l'hypothèse que des fluctuations dans la distribution des charges à la surface des particules sont responsables de la diffusion orientationnelle de nos rouleurs. Reste à vérifier par le calcul que le taux de ces fluctuations ne dépend pas du champ électrique appliqué.

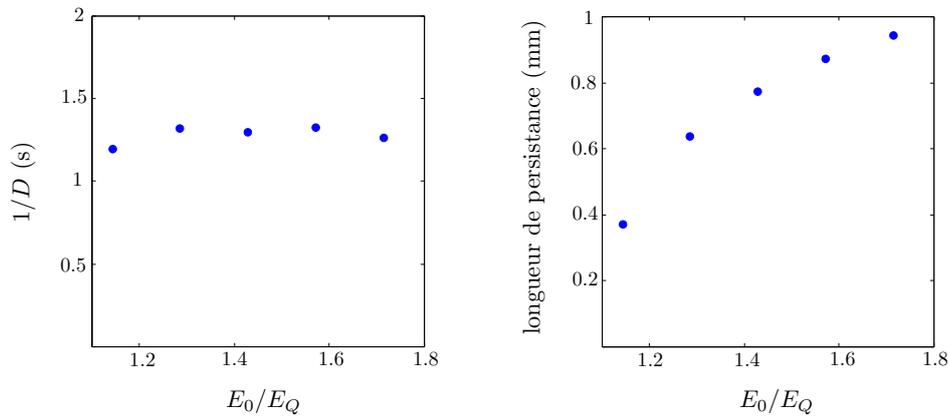


FIGURE 5.9: Temps de persistance et longueur de persistance en fonction du champ électrique appliqué. **a.** Temps de persistance (inverse du coefficient de diffusion) en fonction du champ appliqué. **b.** Longueur de persistance en fonction du champ appliqué.



## Systemes experimentaux pour l'etude de larges assemblees de rouleurs de Quincke en interaction.

Dans ce chapitre, je presente les systemes experimentaux que j'ai mis au point et utilises pour etudier de larges ensembles de rouleurs de Quincke en interaction. L'utilisation inedite de l'electro-rotation de Quincke comme mecanisme de propulsion a d'abord ete implimentee dans l'equipe par Antoine Bricard, egalement doctorant avec Denis Bartolo. J'ai pu beneficier de son experience et ensemble nous avons optimise le processus de preparation des rouleurs et la fabrication des dispositifs microfluidiques. Nous verrons que le choix de se placer dans le cadre de la microfluidique permet a la fois de repondre a des exigences scientifiques et de se soustraire a des difficultes experimentales. Dans ce chapitre, je passe en revue le choix et la preparation de la solution ainsi que des rouleurs. Ensuite, je decris le design de circuits microfluidiques « simples » realises a l'aide de ruban adhésif double-face. Je presente aussi le processus de fabrication de circuits par lithographie optique, technique que j'ai du mettre en place et optimiser pour la realisation de circuits avec des motifs de tailles inferieures a la centaine de microns (cf. chapitre 8 : Dynamique de particules autopropulsees dans des milieux desordonnes). Enfin, je passe en revue les techniques d'imagerie, d'acquisition de donnees a haut debit, et de traitement de donnees que j'ai du mettre en place pour exploiter la richesse des montages experimentaux.

## 6.1 Choix du cadre microfluidique

Nous avons décidé d'étudier de larges ensembles de rouleurs de Quincke en interaction dans le cadre de la microfluidique. Outre le fait que notre groupe possède les outils et l'expertise propre à ce domaine, ce choix a plusieurs avantages. Tout d'abord, on peut noter que le taux de rotation d'une particule soumise à l'effet Quincke (cf. Eq 5.8) ne dépend pas du rayon de celle-ci. Ainsi la taille des particules n'est pas *a priori* une contrainte. Pour pouvoir étudier des assemblées contenant un nombre très important de rouleurs, on utilise donc des billes de taille micrométrique. Les techniques de microscopie et de traitement de données permettent ensuite de suivre relativement facilement les trajectoires individuelles des particules dans de très larges ensembles. Aussi, nous verrons dans le chapitre suivant que les interactions entre les rouleurs dans nos dispositifs microfluidiques sont descriptibles analytiquement et que des raisonnements de type champ moyen peuvent être appliqués pour décrire certains des comportements observés. Enfin, notons que l'utilisation de dispositifs de taille micrométrique répond à une contrainte sur le champ électrique à appliquer pour déclencher l'électro-rotation de Quincke. En effet, nous avons vu au chapitre précédent que le champ électrique seuil pour déclencher la rotation de Quincke est de l'ordre du millier de volts par millimètre. Pour des billes de taille micrométrique plongées dans un dispositif microfluidique de hauteur de l'ordre de la centaine de microns, cela revient à appliquer des tensions de quelques centaines de volts. Cela reste réalisable assez facilement avec du matériel peu onéreux. Appliquer les tensions nécessaires pour déclencher la rotation de particules beaucoup plus grandes nécessiterait à la fois du matériel spécialisé et de nombreuses précautions pour la sécurité des personnes.

## 6.2 Choix et préparation de la solution et des colloïdes

Pour pouvoir observer un très grand nombre de particules, nous avons décidé d'utiliser des billes de petite taille, de l'ordre du micron. Ces billes sont plongées dans un liquide conducteur qui remplit un circuit microfluidique. Le travail initial de choix et d'optimisation des colloïdes et de la solution conductrice a été réalisé par Antoine Bricard dans le cadre de sa thèse avec Denis. Je décris ci-dessous la configuration finale à laquelle nous avons abouti après de nombreux essais. Rappelons que pour profiter de l'électro-rotation de Quincke, nos particules doivent être isolantes et plongées dans un liquide conducteur. La configuration choisie est celle déjà utilisée par Nicolas Pannacci et Elisabeth Lemaire dans de précédents travaux [70], à savoir des billes en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) qui sont plongées dans une huile à laquelle on rajoute des ions qui joueront le rôle de porteurs de charges dans le liquide. Le choix des billes en PMMA s'est porté sur des colloïdes commerciaux de rayon  $2.4 \mu\text{m}$  (Thermo Scientific G0500) en raison de leur faible dispersité de tailles. L'huile utilisée est de l'hexadécane pur (Sigma Aldrich, Hexadecane ReagentPlus,

99%) dans laquelle on dissout du docusate de sodium (Sigma Aldrich, Docusate sodium salt BioXtra,  $\geq 99\%$ ) pour fournir les ions porteurs de charges. Le docusate de sodium (AOT) se présente sous forme de sel solide. La concentration en AOT joue un rôle assez important sur la dynamique des colloïdes, notamment sur le confinement au niveau des bords des chambres microfluidiques (voir sec 7.1). Dans toutes les expériences présentées dans cette thèse, on utilise une concentration en AOT de  $0.15\text{mol.l}^{-1}$ , ce qui revient à dissoudre 0.66 g de sel pour 10 ml de solution. La dissolution se fait à l'aide d'une cuve à ultrasons. La solution est ensuite filtrée (taille de pore  $0.45\ \mu\text{m}$ ) pour éliminer les éventuelles poussières ou résidus solides d'AOT. Une des étapes les plus longues (plusieurs dizaines de minutes) de la préparation de l'expérience vient du fait que les billes de PMMA nous sont fournies dans une solution aqueuse. Il faut donc les transférer dans la solution d'hexadécane+AOT avant de les injecter dans le circuit. Une solution simple serait de les faire transiter par de l'isopropanol qui est à la fois miscible dans l'eau et dans l'hexadécane. Or, il se trouve que les billes de PMMA sont solubles dans l'isopropanol ce qui complique notre tâche. Nous devons donc suivre un protocole de "lavage" des colloïdes un peu plus complexe :

1. On centrifuge la solution initiale, les colloïdes sont plus denses que la phase aqueuse et coulent au fond du tube.
2. On récupère le maximum de la phase liquide à l'aide d'une propipette en essayant de ne pas prélever de colloïdes.
3. On remplace le liquide prélevé par la même quantité de la solution d'hexadécane+AOT et on redisperse les colloïdes à l'aide d'un bain à ultrasons.
4. On centrifuge de nouveau, les colloïdes sont plus denses que la solution d'hexadécane+AOT+résidus d'eau et coulent au fond du tube.
5. On répète les étapes 2 à 4 (en finissant par l'étape 3) entre 5 et 10 fois pour éliminer toute trace d'eau dans le tube.

Il convient en général de préparer un échantillon assez concentré en colloïdes que l'on pourra diluer ensuite à convenance pour les expériences. Cela évite de répéter cette opération de lavage qui est un petit peu fastidieuse. Cependant il faut noter que la solution d'hexadécane+AOT semble "se dégrader" après 3-4 jours, ce qui affecte la dynamique des colloïdes. La raison et la nature de cette dégradation ne nous sont pas connues et nous avons choisi de ne pas utiliser de mélange d'hexadécane+AOT vieux de plus de 3 jours. De plus, les colloïdes ne sont pas "stables" dans l'hexadécane et ils peuvent présenter des déformations après plusieurs jours passés dans l'huile (certainement dues au gonflement de la matrice polymère). Cela nous oblige malheureusement à préparer des échantillons de colloïdes assez régulièrement. Notons ici que les propriétés physico-chimiques et électrocinétiques de notre système sont très complexes. En pratique, nous n'avons pas exploré ces propriétés au cours de ma thèse. Les lecteurs intéressés peuvent se reporter au papier de S.K. Sainis et al. [79] qui présente une caractérisation fine du "trio" colloïdes en PMMA,

hexadécane, AOT. La propriété importante qui nous intéresse ici est le fait que, dans nos expériences, la couche de charge de surface à la surface des billes reste toujours très inférieure à la taille des particules. Cela explique *a posteriori* le fait que notre modèle à longueur de Debye nulle (présenté dans le chapitre suivant) capture bien une partie importante de la phénoménologie de nos expériences.

## 6.3 Dispositifs à base de ruban adhésif

### 6.3.1 Choix des matériaux

Les circuits microfluidiques utilisés pour les expériences des chapitres 5 et 7 se servent d'une technique simple de fabrication basée sur l'utilisation de ruban adhésif double-face. Cette technique a été implantée dans l'équipe par Antoine Bricard de qui j'ai appris le protocole présenté ci-dessous. Dans la section 6.4, je présenterai une autre technique de fabrication de circuits utilisant la lithographie optique. J'ai dû utiliser et optimiser cette technique pour l'étude du chapitre 8 qui nécessite de réaliser des motifs de tailles micro-métriques dans nos circuits. Nos dispositifs microfluidiques sont formés par l'assemblage de deux lames de verre recouvertes sur une face d'une couche conductrice d'indium-étain (ITO) de 80 nm d'épaisseur (Solems, ITOSOL30). Ces lames de verre jouent à la fois le rôle d'électrodes pour l'application du champ électrique et le rôle de parois pour le confinement de la solution. La fine couche d'ITO présente une transmission optique supérieure à 80% dans le visible et permet donc l'utilisation de la microscopie par transmission. La couche d'ITO a une faible résistance carrée de  $25 - 35 \Omega/\square$ , et dans la suite nous négligeons la résistance des électrodes par rapport à celle de la solution (de l'ordre du  $G\Omega$ ). L'assemblage des lames en un circuit microfluidique nécessite l'utilisation d'un espaceur. Celui-ci définit la hauteur du dispositif et assure le confinement latéral des chambres microfluidiques. Si possible, il permet également d'assurer l'étanchéité du dispositif. Dans notre cas, nous avons utilisé du ruban adhésif double-face pour assurer ces fonctions plutôt que de recourir à des méthodes d'assemblage plus complexes comme celles à base de PDMS [59] ou de colles optiques [58]. En effet, vu la durée de vie limitée de nos dispositifs (voir sous-section 6.3.4) et l'absence de contraintes sur les propriétés physiques ou chimiques des parois latérales, le choix du ruban adhésif double-face nous fait gagner beaucoup de temps sur le processus de fabrication. Aussi, l'utilisation d'une découpeuse industrielle (Graphtec, Robo CE 5000 et Robo CE 6000) pour la découpe du ruban adhésif permet une précision et une versatilité très intéressantes. La découpeuse fonctionne un peu à la manière d'une imprimante sur laquelle on aurait remplacé la buse d'injection par une lame de scalpel. La lame est montée sur un roulement à billes qui permet de toujours la maintenir dans le sens de la découpe. Bien réglée, la découpeuse permet de découper rapidement et proprement le ruban adhésif avec une précision de l'ordre de la dizaine de microns (Fig. 6.1).

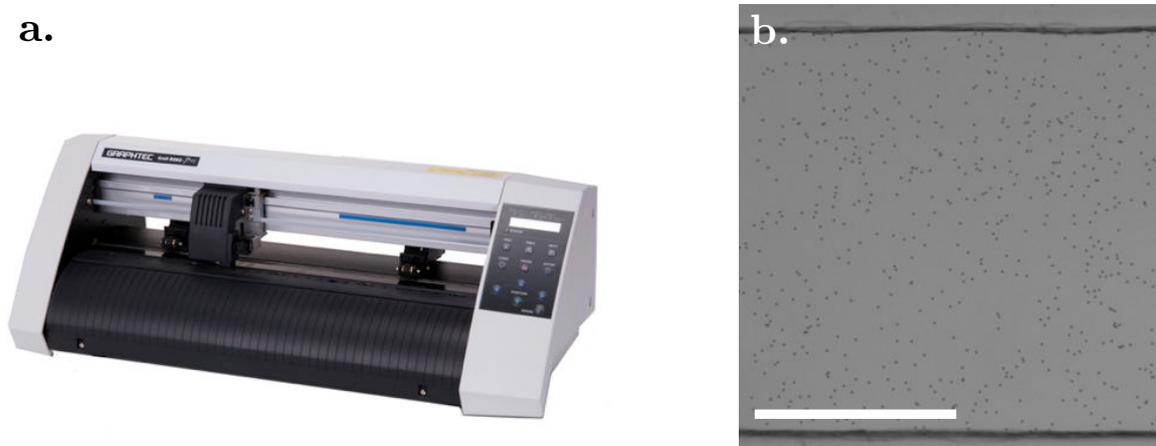


FIGURE 6.1: **a.** Découpeuse Graphtec Rono CE 5000. **b.** Photographie d'un canal de largeur un millimètre découpé dans du ruban adhésif double-face de  $110\ \mu\text{m}$  d'épaisseur. Les points noirs sont des colloïdes de  $4.8\ \mu\text{m}$  de diamètre. Barre d'échelle :  $500\ \mu\text{m}$ .

Le motif à imprimer est simplement produit via un logiciel de dessin vectoriel (dans mon cas Autocad ou Adobe Illustrator). Il peut ensuite être découpé un grand nombre de fois en juste quelques dizaines de secondes. Cette méthode de fabrication permet de produire des espaceurs très rapidement. En plus, si la géométrie ne nous convient pas, il est très aisé de changer le dessin et de relancer une impression. Il est donc bien plus facile de tester plusieurs géométries avec ce protocole qu'avec les méthodes à base de PDMS ou de NOA. Cette méthode est toutefois limitée par la résolution de la découpeuse qui ne permet pas de découper précisément des motifs de taille inférieure à la centaine de microns. C'est pourquoi nous avons dû utiliser également la lithographie optique pour les circuits de l'étude du chapitre 8. Le protocole de fabrication utilisant la lithographie optique est présenté plus loin dans la section 6.4.

### 6.3.2 Assemblage des circuits

Le design que nous avons adopté pour les circuits en scotch utilise deux couches d'espaceurs (Fig. 6.2). Cela répond aux besoins simultanés de pouvoir avoir plusieurs chambres fermées et indépendantes sur un même dispositif et de pouvoir changer la solution et la concentration en colloïdes une fois le dispositif fermé. Une des deux couches de ruban adhésif permet ainsi de délimiter une grande zone que nous appelons canal, et qui permet le remplissage du dispositif par la solution. Une deuxième couche de ruban adhésif délimite des zones plus restreintes dans lesquelles se feront nos observations et que nous appelons les chambres. Cette couche de ruban adhésif possède une double utilité : elle confine les

rouleurs en jouant le rôle de parois latérales, et, puisque le ruban adhésif est isolant, elle assure que le courant électrique dans la solution ne passe qu'au niveau des chambres. Les colloïdes à l'extérieur des chambres restent donc immobiles et ne viennent pas s'accumuler dans les chambres. Le nombre de particules dans les chambres reste constant au cours du temps et dépend uniquement de la concentration initiale injectée dans le dispositif. La concentration peut par ailleurs être changée à tout moment en injectant une solution de concentration différente puisque les chambres ne sont pas complètement fermées grâce à la couche de ruban adhésif qui délimite le canal.

### 6.3.3 Connectiques fluidiques

L'injection de la solution et des colloïdes se fait par la lame du haut dans laquelle on perce un trou d'entrée et un trou de sortie à l'aide d'une sableuse (Bipol Microstar Jet 1 avec sable Corindon Blanc Premium 35-25  $\mu\text{m}$ ). Les connectiques sont réalisées à partir de petits blocs de plexiglas, percés de trous de 1.6 mm, dans lesquels on fait passer des tubes rigides, qui sont montés avec forçage puis coupés à ras. Les blocs de plexiglas sont ensuite fixés à la lame de verre à l'aide de petits morceaux de ruban adhésif double-face (Fig. 6.2). Ces connectiques se montent en quelques secondes et sont réutilisables à souhait. Elles résistent à des pressions importantes de l'ordre du bar. Les connectiques se détachent généralement au bout de quelques heures à cause d'infiltrations d'hexadécane qui inhibent l'adhésion du ruban adhésif. Si l'on souhaite augmenter la durée d'adhésion, il est toujours possible d'utiliser une colle réticulable pour renforcer le collage.

### 6.3.4 Connectiques électriques

Le dispositif microfluidique est relié à la source de tension par des câbles électriques. Ces câbles sont attachés lames recouvertes d'ITO à l'aide de ruban adhésif en cuivre dont la couche adhésive est également conductrice. Pour fournir les fortes tensions nécessaires (jusqu'à 1000V), nous avons dû utiliser un amplificateur de tension (Trek, 606E-6), qui amplifie la sortie d'un générateur basse fréquence. Il est important maintenant de mentionner un problème auquel nous avons dû faire face lors de l'utilisation de nos dispositifs. Après une vingtaine de minutes d'utilisation d'un dispositif, on remarque en général que la dynamique des colloïdes n'est plus homogène spatialement. Cette observation s'accompagne de l'apparition d'un film sombre, semble-t-il peu conducteur, à la surface de la cathode. Ce film sombre est probablement le résultat d'une réaction de réduction à la surface de l'électrode. Ce phénomène restreint notre temps d'utilisation d'un dispositif à 15-20 minutes. Comme nous le verrons dans la section suivante, cela ne nous limite pas pour l'étude de la dynamique des colloïdes. En effet, les rouleurs sont très rapides et ils se déplacent sur des distances de l'ordre de  $10^6$  rayons pendant cette durée. Néanmoins, cette limitation est gênante puisque le temps d'utilisation d'un dispositif devient très faible devant son temps

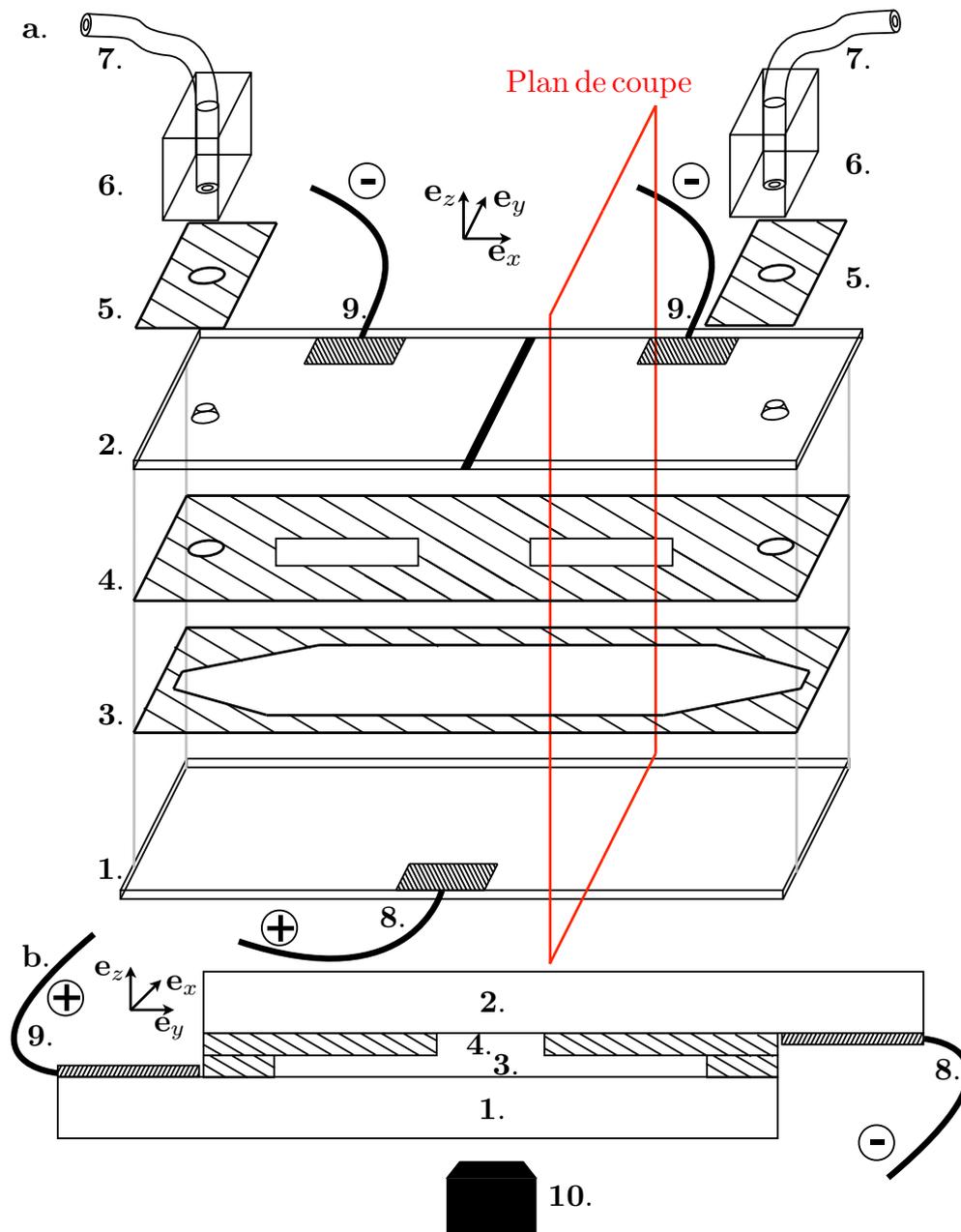


FIGURE 6.2: Schémas d'un dispositif microfluidique en ruban adhésif comprenant deux chambres rectangulaires. **a.** Vue éclatée du dispositif. **b.** Vue en coupe du dispositif. Légende : 1. lame de verre. La surface supérieure est recouverte d'une couche conductrice d'ITO. 2. lame de verre. La surface inférieure est recouverte d'une couche d'ITO. La couche d'ITO peut être retirée localement (trait noir au milieu) pour créer des électrodes indépendantes. Deux trous sont percés dans la lame pour pouvoir alimenter le dispositif en fluides. 3. Espaceur en ruban adhésif double-face. En creux est défini le canal qui permet la circulation des fluides. 4. Espaceur en ruban adhésif double-face. En creux sont définies deux chambres rectangulaires. Elles seules seront traversées par un courant et elles définissent donc les zones d'activité des colloïdes. Les deux trous sur les côtés permettent la circulation des fluides. 5. Petites pièces de ruban adhésif double-face qui permettent de maintenir les connectiques pour les fluides. 6. Connectiques pour les fluides. Petits blocs de PMMA qui maintiennent les tuyaux d'alimentation et assurent l'étanchéité. 7. Tuyaux reliés respectivement aux entrée et sortie des fluides. 8. Ruban adhésif conducteur qui maintient un fil électrique qui relie la lame à un générateur de tension. 9. Rubans adhésifs conducteurs et fils qui relie la lame à la masse. 10. Objectif de microscope.

de production. Pour tirer au mieux parti de chaque dispositif, nous avons donc utilisé une technique qui permet d'utiliser chaque chambre du dispositif de manière indépendante. Précédemment, nous avons vu que l'utilisation de deux couches de ruban adhésif double-face permet de réaliser plusieurs chambres microfluidiques indépendantes au sein du même dispositif. Cependant, une fois la tension appliquée sur les électrodes, le courant passe partout où le ruban adhésif n'est pas en travers. Les colloïdes se mettent donc à bouger dans toutes les chambres en même temps. Or il est impossible de filmer en même temps toutes les chambres avec une résolution et un débit suffisants. Pour pouvoir exploiter le plus longtemps possible toutes les chambres, il faut les rendre indépendantes électriquement. Pour cela, nous avons utilisé une technique de gravure à l'acide qui permet d'enlever localement la couche d'ITO qui recouvre les lames de verre. De cette manière, on peut obtenir plusieurs électrodes indépendantes sur la même lame de verre (Fig. 6.3). Le protocole de gravure est le suivant :

1. A l'aide de ruban adhésif découpé à la découpeuse, on protège les parties de la couche d'ITO que l'on souhaite préserver.
2. On plonge la lame de verre dans de l'acide chlorhydrique à 37% ( $12 \text{ mol.l}^{-1}$ ) pendant 10 min.

Les parties en contact avec l'acide sont complètement débarrassées de leur couche d'ITO alors que les parties protégées par le scotch ne sont pas modifiées.

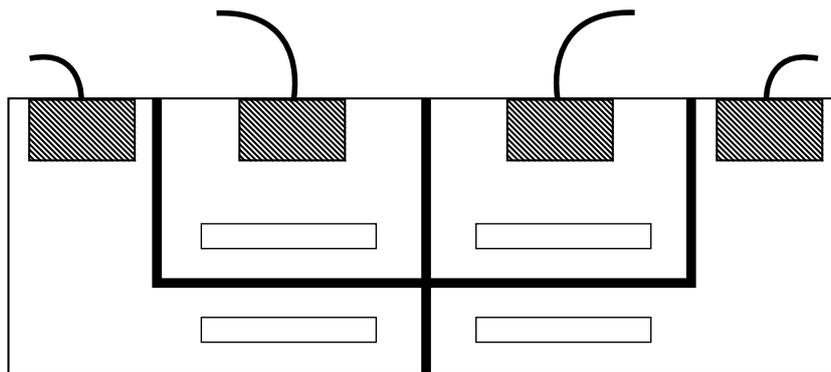


FIGURE 6.3: Vue du dessus d'une lame couverte d'ITO et gravée à l'acide. Les larges traits noirs représentent les zones où l'ITO a été retiré par l'acide. Ils définissent quatre zones indépendantes électriquement. Les rectangles non hachurés symbolisent les emplacements où d'éventuelles chambres rectangulaires pourraient être placées et utilisées de manière indépendante.

## 6.4 Dispositifs fabriqués par lithographie optique

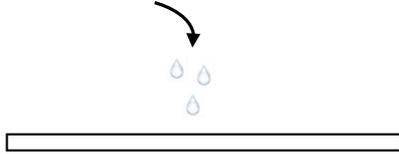
On a vu que l'utilisation de ruban adhésif double-face pour la fabrication de nos dispositifs microfluidiques permet de produire très rapidement de nombreux circuits et offre une versatilité très intéressante. La principale limite de cette méthode de fabrication vient de la difficulté de découper précisément des petits motifs dans le ruban adhésif. Ainsi, les découpeuses que nous avons utilisées ne permettent pas de produire de manière reproductible des motifs dont la taille est inférieure à la centaine de microns. Pour l'étude du chapitre 8 sur la dynamique de particules autopropulsées dans des milieux désordonnés, nous avons eu besoin de produire des chambres microfluidiques remplies de plots de diamètre de l'ordre de la dizaine de microns. Pour fabriquer ces dispositifs, j'ai utilisé une méthode de fabrication plus classique, et surtout bien plus résolue, la lithographie optique. L'idée de base est de remplacer l'une des deux couches de scotch, celle qui délimite les contours des chambres, par une couche de résine photosensible dans laquelle on peut venir "graver" par lithographie optique les chambres microfluidiques et les petits motifs souhaités à l'intérieur de celles-ci. On conserve en revanche la seconde couche de ruban adhésif qui délimite les contours du canal principal et qui permet d'alimenter les chambres en colloïdes. Le protocole de fabrication par lithographie optique est présenté dans la figure 6.4. L'adhésion des motifs de petites tailles à la couche d'ITO a été mon principal challenge pour la mise en oeuvre de ce protocole. En effet, les résines les plus couramment utilisées en microfluidique, les résines négatives SU-8 à base d'époxy, possèdent une bonne adhésion avec le verre mais une faible adhésion avec les oxydes métalliques comme l'ITO. Après plusieurs essais avec différentes résines, mon choix s'est porté sur la résine positive S1818 qui présente une adhésion suffisante avec l'ITO. Pour les masques, j'ai choisi de les commander à une entreprise suisse, Selba S.A, qui propose des impressions sur films transparents (solution la plus rapide et la moins onéreuse) avec une résolution de l'ordre de quelques microns. Le dessin est réalisé sous Autocad puis envoyé à l'entreprise pour impression 50800 dpi sur films transparents.

## 6.5 Imagerie : microscopie et microscopie en champ sombre

Pour les expériences sur les particules autopropulsées, j'ai utilisé deux montages complémentaires. Le premier est un montage de microscopie en champ sombre qui permet d'obtenir des images grand champ (jusqu'à 2 cm de large) des chambres microfluidiques (Fig. 6.5). J'ai mis en place ce dispositif pour étudier des structures dynamiques dont l'extension est millimétrique (voire centimétrique) et qui se propagent sur l'intégralité de la chambre microfluidique. Avec ce montage, la résolution n'est pas assez bonne pour distinguer les particules mais comme nous le verrons l'intensité lumineuse est proportionnelle à la densité surfacique en colloïdes. Ce montage utilise une binoculaire Nikon AMZ1500.

## 1. Nettoyage de la lame

Acétone, Isopropanol, Eau déionisée



Séchage à l'azote et passage sur la plaque chauffante à 100°C

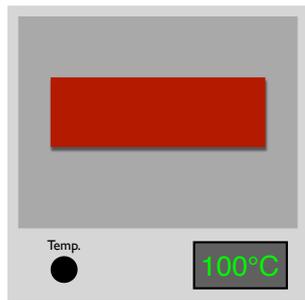
## 2. Spin Coating

résine positive S1818



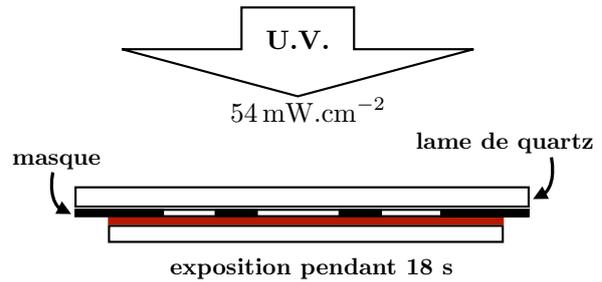
## 3. Cuisson pré-exposition

plaque chauffante

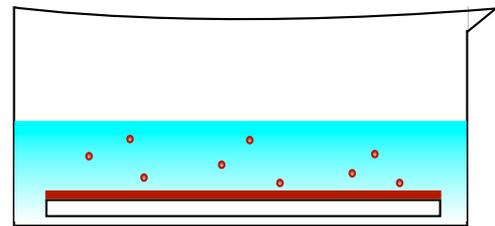


5 min à 100°C

## 4. Exposition



## 5. Développement



immersion 40 - 50 s dans le développeur

rinçage à l'eau déionisée



FIGURE 6.4: Protocole de lithographie optique sur une lame de verre couverte d'ITO. Légende : 1. On nettoie la lame de verre recouverte d'ITO en la plongeant 5 min dans de l'acétone, puis 5 min dans de l'isopropanol. La lame est ensuite rincée à l'eau déionisée puis séchée avec un jet d'azote. La lame est alors posée 5 min sur une plaque chauffante à 100°C pour éliminer les éventuelles traces d'alcool ou d'eau restantes. 2. On dépose un film de résine positive S1818 (MICROPOSIT, S1818 G2 Positive Photoresist) sur la lame par enduction centrifuge (spin coating). Avec la vitesse de rotation choisie, le film a une épaisseur finale d'environ 2  $\mu\text{m}$ . 3. On pose la lame sur une plaque chauffante à 100°C pendant 5 min pour éliminer l'excès de solvant dans la résine. 4. On pose un masque avec le motif à graver directement sur la résine et on pose une plaque de quartz par-dessus pour avoir un bon contact entre le masque et la résine. Le tout est fermement maintenu ensemble par des pinces. On place l'ensemble sous une lampe UV (Hamamatsu, Spot light source LC8 LIGHTNINGCURE : L9588) et on insole 18s (puissance utilisée : 54  $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ). Puisqu'on utilise une résine positive, les parties éclairées de la résine sont celles qui vont partir au développement alors que les parties non éclairées restent. 5. On plonge la résine dans la solution développante (MICROPOSIT, MF-319 developer) pendant 45s en remuant légèrement le bécher. Le développeur élimine la résine au niveau des parties éclairées. La résine qui n'a pas été éclairée reste sous forme solide. Le circuit est ensuite simplement fermé en venant coller sur la résine l'autre lame de verre qui est recouverte de la couche de ruban adhésif double-face délimitant le canal principal.

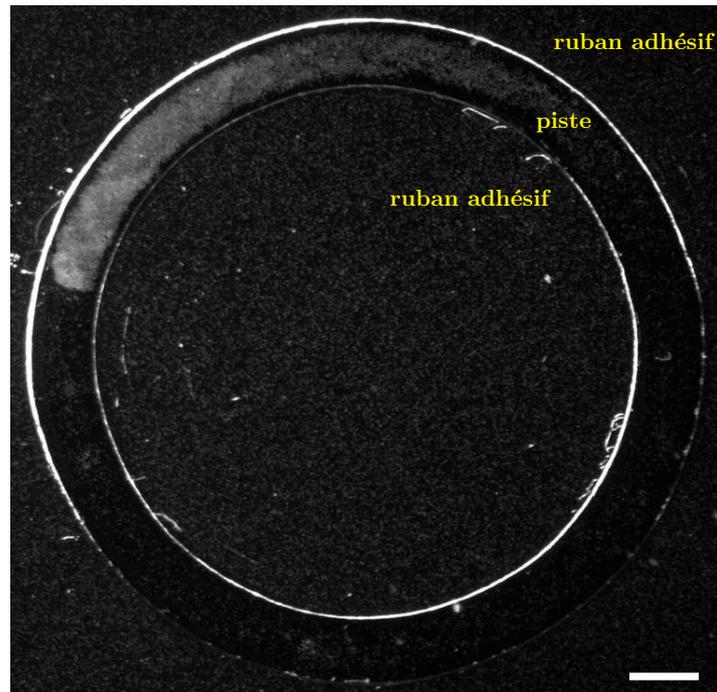


FIGURE 6.5: Image par microscopie en champ sombre d'une chambre microfluidique en forme de "piste d'athlétisme" circulaire. Les points blancs sont les rouleurs colloïdaux. En dehors de la piste, le ruban adhésif empêche le passage du courant et les rouleurs sont immobiles. Dans la piste, le courant peut traverser d'une électrode à l'autre et les rouleurs se déplacent. Ici, on les voit former une bande contenant plusieurs dizaines de milliers de rouleurs. Barre d'échelle : 1 mm.

Le dispositif microfluidique est illuminé par le bas à l'aide d'un éclairage annulaire. La lumière diffusée par les particules est recueillie par l'objectif au dessus du dispositif. Ce montage est un montage en champ sombre car seule la lumière diffusée par les particules est recueillie au niveau de l'objectif. En effet, comme la lumière n'arrive pas sur le circuit à la verticale, les zones où il n'y a pas de particules pour diffuser la lumière ne renvoient aucun rayon vers l'objectif. Ce dispositif m'a permis de caractériser la dynamique grande échelle de notre système, et notamment d'étudier les motifs macroscopiques qui peuvent y apparaître. Le deuxième appareil utilisé, un microscope inversé Nikon AZ100 Multizoom, prend des images avec un grossissement plus important qui permet de distinguer les particules et donc de suivre leurs trajectoires individuelles, tout en gardant un champ assez large (Fig. 6.6). C'est un montage simple en transmission où l'éclairage est à la verticale de l'objectif. Les particules apparaissent donc maintenant comme des points plus sombres que le fond (avec une tâche lumineuse au milieu à cause d'interférences optiques). Avec le grossissement minimal qui permette de détecter les particules de manière individuelle, on conserve un champ assez important de largeur 1.5 mm.

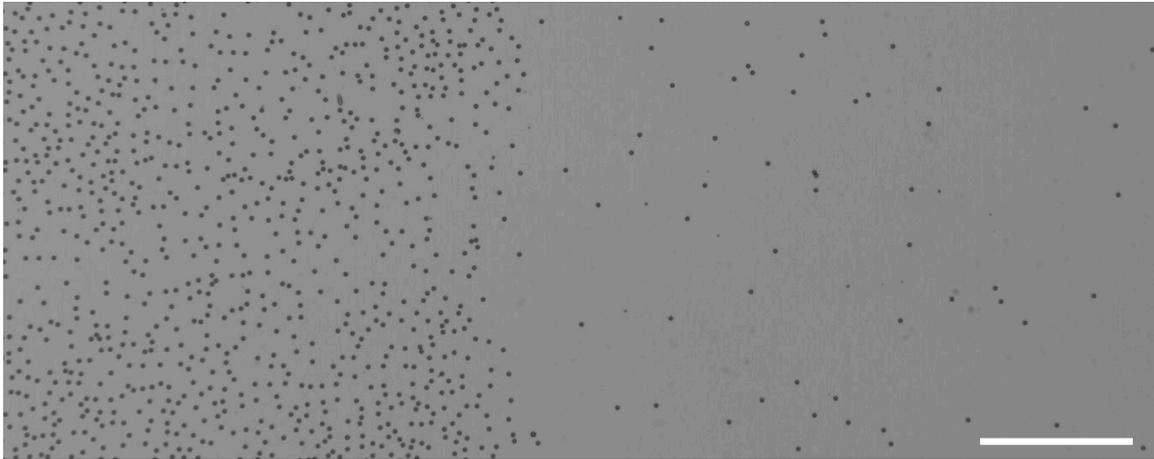


FIGURE 6.6: Image par microscopie inversée du centre d'une piste microfluidique rectangulaire. Les bords de la piste, indiqués par les pointillés, ne sont pas visibles dans le champ de l'image. Ici, chaque particule est détectable individuellement. Dans cette image, on distingue nettement le front d'une bande formée par les rouleurs. Barre d'échelle :  $200 \mu\text{m}$ .

## 6.6 Acquisition d'images à haut débit

Une des difficultés majeures des expériences avec les rouleurs colloïdaux vient du fait de leur vitesse très élevée (300 fois leur diamètre en une seconde). Dès lors, si l'on souhaite suivre les trajectoires individuelles de chaque particule, il faut filmer le système avec une fréquence très importante. Nous avons donc utilisé une caméra rapide 8 bits noir et blanc Basler Ace acA2040-180km. La résolution maximale est de 4Mpx (2048x2048) avec une fréquence d'acquisition de 180 images par seconde. Pour être capable de suivre les trajectoires des particules, il faut réduire la taille de l'image par un facteur légèrement supérieur à 2 (2040\*900) ce qui nous permet d'atteindre des fréquences d'acquisition de l'ordre de 400 images par seconde. Une autre difficulté consiste alors à enregistrer le flux très important de données, environ  $800\text{Mo}\cdot\text{s}^{-1}$ . C'est impossible sur un disque dur classique qui gère des débits en écriture de l'ordre de  $100\text{Mo}\cdot\text{s}^{-1}$ . Une solution simple consisterait à écrire sur la mémoire RAM de l'ordinateur, puis, une fois l'acquisition terminée, de transférer les données sur un disque dur classique. Cependant, cela nous limiterait à des films de quelques

secondes, trop peu pour exploiter la riche dynamique de notre système. J'ai donc adopté le même dispositif qu'Antoine, qui semble être la seule solution à même de gérer ce genre de débit, et qui consiste à enregistrer les films sur une grappe de 4 disques durs SSD montés en RAID0. Le RAID0 permet d'écrire sur les 4 disques comme s'il s'agissait d'un seul, sans redondance des données. Avec ce montage, le débit est maintenant limité par les bandes passantes de la carte d'acquisition et de la carte qui contrôle le RAID0. Pour mettre en oeuvre cette solution, j'ai monté un ordinateur sur le modèle de celui commandé par Antoine chez R&D Vision. Le RAID0 est composé de quatre disques durs SSD de 256Go, ce qui fait un total de 1To d'espace disponible sur le disque d'acquisition. Dans un premier temps, l'acquisition d'images et l'écriture sur le RAID0 étaient gérées par un programme Labview que j'ai écrit en utilisant la bibliothèque Matrox Imaging Library (MIL) fournie avec la carte d'acquisition Matrox Radiant eCL. Avec ce programme, le débit en écriture sur le disque était limité à  $500 \text{ Mo.s}^{-1}$  (120 images par seconde en utilisant tout le champ de la caméra). Pour obtenir des débits plus rapides, nous avons fait appel à l'aide d'un jeune programmeur, Jules Casoli, qui nous a écrit un programme équivalent en C++. Avec ce programme en C++, nous avons pu exploiter pleinement les performances de la caméra et atteindre un débit en écriture de  $800 \text{ Mo.s}^{-1}$ . Cette solution est stable et permet un enregistrement des images en flux continu et sans perte pendant une vingtaine de minutes. Après vingt minutes, le disque d'acquisition est plein et il faut transférer les données sur un disque de stockage avant de pouvoir continuer les expériences.

## 6.7 Traitement des données

Une série d'expériences génère typiquement 2-3 To de données. Quand on manipule des volumes aussi importants, il faut faire attention aux problèmes de stockage (au final, on ne conserve pas forcément les images mais uniquement les fichiers avec les positions des particules en fonction du temps) et apporter du soin à la programmation du traitement des données.

### 6.7.1 Détection des rouleurs

La première étape dans le traitement des images consiste à détecter les positions des particules à chaque pas de temps (i.e. sur chaque image). Pour cela, j'ai utilisé le logiciel gratuit ImageJ. L'idée de l'algorithme utilisé est de détecter les zones dont la luminosité contraste avec celle du fond. Si les zones ainsi détectées ont une forme et une surface comparables à celles attendues pour une particule, l'algorithme calcule les positions de leurs centres de masse. Pour chaque image, on obtient une liste avec les positions de tous les centres de masse des rouleurs. Cette méthode de détection permet une résolution subpixel sur les positions des centres des particules. Les étapes nécessaires à la mise en place de l'algorithme de détection sont résumées ci-dessous et illustrées dans la figure Fig. 6.7.

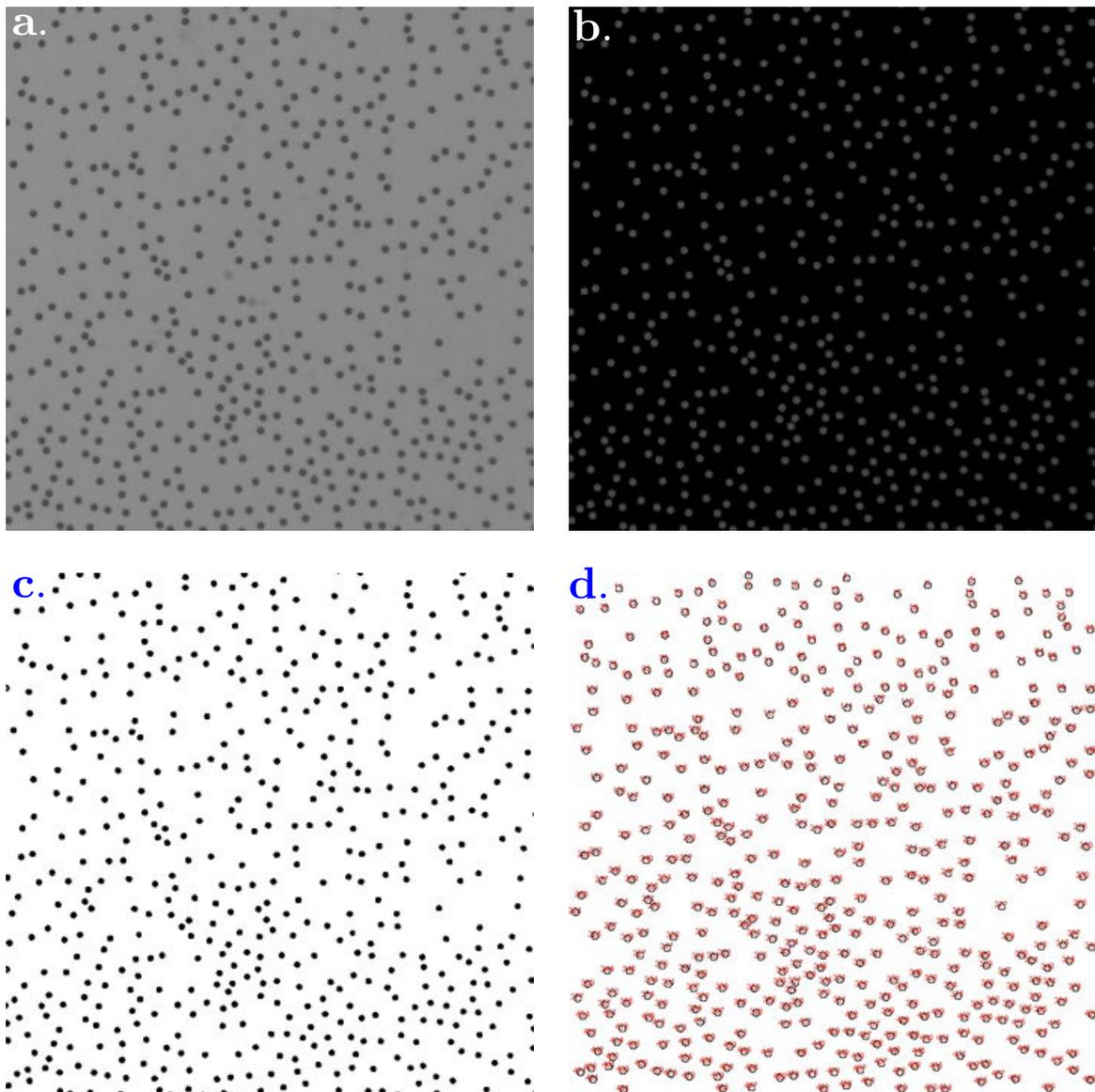


FIGURE 6.7: Etapes pour la détection des particules à partir de l'image brute. **a.** Image brute. **b.** Image après soustraction du background. **c.** Image après seuillage puis binarisation. **d.** Détection des contours des particules.

1. On divise l'image brute par une image du background (i.e. sans les particules) prise avant l'injection des colloïdes. Pour les systèmes dilués, on peut aussi obtenir une image du background en moyennant toutes les images d'un film. En effet, comme les particules sont toujours en mouvement et que le système est dilué, chaque pixel est la plupart du temps libre de particules.
2. On seuille l'image obtenue afin de la binariser. Les particules apparaissent alors

comme des cercles noirs sur un fond blanc.

3. On applique un filtre sur l'aire et la forme géométrique des disques définis par les cercles noirs. Si un cercle noir est bien rond et que l'aire qu'il délimite correspond à celle attendue pour une particule, on calcule la position de son centre de masse.

Pour un film de quelques minutes (et donc typiquement une centaine de milliers d'images si on enregistre à 400 images par seconde), cette étape de détection prend 2-3 heures. Elle génère des fichiers positions qui restent très lourds (quelques dizaines de Go).

### 6.7.2 Reconstitution des trajectoires

L'étape de détection permet d'obtenir la liste des positions à chaque pas de temps mais ne permet pas de suivre les trajectoires des particules. En effet, chaque pas de temps est traité de manière indépendante et les particules n'ont pas un identifiant fixe (un label) qu'elles conservent à chaque pas de temps. L'étape de tracking consiste à reconstruire les trajectoires des particules (i.e. à leur attribuer un label fixe) à partir des fichiers positions obtenus par l'étape de détection. Cette procédure de reconstruction est complexe à programmer et j'ai utilisé au cours de ma thèse la version Matlab de l'algorithme très utilisé de J.C. Crooker et D.G. Grier [60]. Cet algorithme est basé sur la minimisation de tous les déplacements possibles des particules entre deux images consécutives. Pour que l'algorithme converge et identifie la plupart du temps de manière univoque chaque particule, il faut que le déplacement maximum des particules entre deux pas de temps soit plus faible que la distance moyenne entre les particules. En pratique, et c'est ce que nous avons fait dans cette thèse, il convient même de filmer à une fréquence assez élevée pour que le déplacement d'une particule entre deux pas de temps soit inférieur à son rayon. Alors, l'algorithme ne peut jamais confondre deux particules, même lorsque celles-ci sont en contact. Cette contrainte posée par l'algorithme de tracking est ce qui nous oblige à acquérir des films avec une fréquence élevée de l'ordre de 400 images par seconde. Aussi, pour cette étape de traitement, j'ai utilisé une optimisation mise au point dans notre équipe par Raphaël Jeanret. Le problème avec l'algorithme initial est que tracker sur toute la durée d'une expérience nécessite de manipuler des fichiers de données avec des tailles de l'ordre de 30-40 Go. Cela conduit nécessairement à une saturation de la mémoire vive de l'ordinateur ce qui ralentit grandement les calculs (tracker un film de 5 minutes peut alors prendre plusieurs jours). L'idée est de diviser le film de l'expérience en petits intervalles de même durée et de tracker les trajectoires sur chacun de ces intervalles de manière indépendante. On reconstitue ensuite les trajectoires globales en réassociant les trajectoires obtenues dans chaque intervalle de temps. Concrètement, on effectue l'étape de détection sur des paquets de 1000 images et on crée alors des fichiers textes qui contiennent les positions des 1000 images consécutives. Avec l'algorithme de tracking, on reconstitue les trajectoires dans chaque intervalle de 1000 images. La dernière étape consiste à comparer la dernière image de l'intervalle n-1 avec

la première de l'intervalle  $n$  pour reconstituer les trajectoires globales. Cette méthode fait passer le temps nécessaire au tracking d'une expérience de plusieurs jours à environ 2-3 heures.

## Dynamique collective d'une assemblée de rouleurs colloïdaux.

Dans la nature, on trouve des systèmes constitués de larges assemblées d'entités auto-propulsées à de nombreuses échelles. Citons par exemple les colonies de bactéries aux échelles nanométriques et les bancs de poissons aux échelles opposées de l'ordre du mètre. Ces systèmes, malgré des mécanismes d'interaction entre les individus complètement différents, présentent tous des formes d'organisation à une échelle grande devant la taille des individus. Malgré la diversité de ces formes d'organisation, la communauté physicienne espère pouvoir identifier les "ingrédients" minimaux à l'origine de cette phénoménologie. C'est notamment l'idée du célèbre modèle de Vicsek qui montre qu'une simple règle d'alignement local des individus permet d'observer une organisation à grande échelle [34]. Bien sûr, les systèmes physiques présentent en général une complexité bien plus grande et les interactions entre les individus ne sont le plus souvent connues que de manière très partielle. Dans ce chapitre, je présente le travail que j'ai effectué sur la transition vers le mouvement collectif de larges assemblées de rouleurs de Quincke. Nous verrons que la phénoménologie observée est très proche de celle du modèle canonique de la matière active polaire (modèle de Vicsek). Ainsi, on observe une phase homogène isotrope de type gaz à basse densité en particules, des bandes propagatives au niveau de la transition vers le mouvement collectif, et enfin une phase homogène complètement polarisée à haute densité. Notre système nous permet de caractériser en détail chacune de ces phases. On montre notamment que la phase liquide polaire à haute densité ne présente pas de fluctuations géantes de densité, contrairement aux simulations numériques du modèle de Vicsek. Un des intérêts majeurs de notre système est que les interactions entre les rouleurs sont descriptibles au niveau

microscopique. Je présenterai brièvement quelques éléments de théorie qui montrent que des interactions d'alignement sont bien responsables de la transition vers le mouvement collectif dans notre système.

## 7.1 Confinement des particules

Contrairement aux simulations numériques où l'on peut utiliser des conditions aux limites périodiques, nos dispositifs microfluidiques possèdent forcément des murs latéraux qui confinent les rouleurs. Dans cette section, j'étudie la nature du confinement au niveau des murs. Nous verrons que les murs ont une action répulsive sur les particules. Cette répulsion est causée par des effets d'électrohydrodynamique au niveau des parois. J'explique ensuite le choix de la forme géométrique du confinement que nous avons utilisée pour notre étude sur le mouvement collectif des rouleurs.

### 7.1.1 Interaction avec un mur

Dans le chapitre précédent, j'ai présenté les deux types de dispositifs microfluidiques que j'ai utilisés avec les rouleurs colloïdaux. Pour l'étude de ce chapitre sur le mouvement collectif de larges populations de rouleurs, j'ai utilisé des dispositifs à base de deux épaisseurs de ruban adhésif double-face (voir section 6.3). Dans ces dispositifs, la couche inférieure de ruban adhésif délimite les bords du canal principal qui sert à l'injection des colloïdes. La couche supérieure délimite des zones plus restreintes, les chambres, où les colloïdes seront en mouvement (Fig. 7.1 a.). Expérimentalement, on observe que les rouleurs à l'intérieur des chambres sont confinés, et ce bien que sur la lame du bas, il n'y ait pas de parois solides qui les empêchent de sortir (Fig. 7.1 a.). Le confinement est en fait assuré par des flux électrohydrodynamiques qui repoussent les particules lorsqu'elles approchent des bords de la chambre. Ces flux électrohydrodynamiques résultent de la discontinuité de courant au niveau des bords de la couche qui délimite les chambres [69, 80]. Le mécanisme de confinement est le même dans les dispositifs microfluidiques où les chambres sont délimitées par une fine couche de résine photolithographiée sur l'électrode du bas (voir figure Fig. 7.1 b. et vidéo à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/int\\_mur.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/int_mur.mov)). La description du mécanisme qui engendre les rouleaux de convection et la description de la forme exacte des rouleaux nécessitent de connaître en détail l'électro-chimie du dispositif et de prendre en compte des aspects géométriques qui compliquent les calculs. Par manque de temps, nous n'avons pas cherché à décrire de manière théorique le mécanisme de confinement. Nous avons néanmoins cherché à le caractériser expérimentalement. Tout d'abord, pour vérifier que le confinement est bien dû à des rouleaux de convection, j'ai réalisé un dispositif microfluidique observable par la tranche. La figure Fig. 7.2 montre des colloïdes qui suivent le mouvement de convection du fluide au niveau du bord d'une chambre délimitée par un morceau de ruban adhésif. Dans tous nos

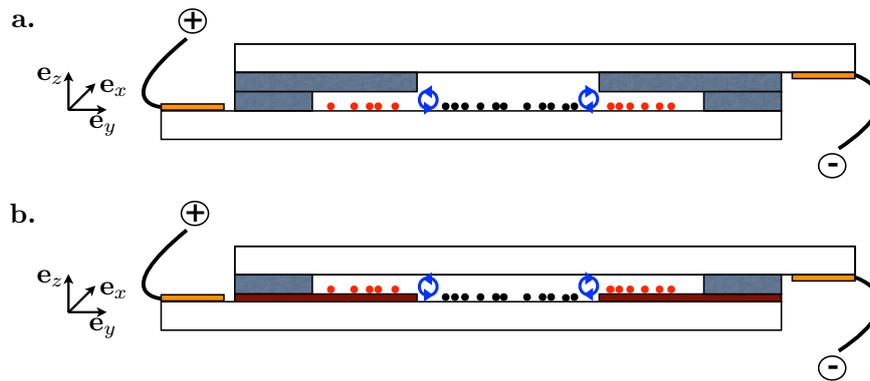


FIGURE 7.1: Vue en coupe des dispositifs microfluidiques et du mécanisme de confinement des rouleurs. **a.** Dispositif où les espaceurs sont deux épaisseurs de ruban adhésif double-face. La couche supérieure définit les chambres où le courant va pouvoir circuler d'une électrode à l'autre. Les colloïdes dans les chambres (en noir) vont subir l'effet Quincke et se déplacer. Les colloïdes en dehors des chambres (en rouge) sont immobiles. Le confinement des rouleurs à l'intérieur des chambres est assuré par des flux hydrodynamiques (en bleu) qui résultent de la discontinuité de courant aux bords du ruban adhésif. **b.** Dispositif où les chambres sont délimitées par une couche de résine photolithographiée qui recouvre l'électrode du bas. Le mécanisme de confinement des rouleurs dans les chambres est le même que dans le dispositif **a.**

dispositifs, on observe que la taille des rouleaux de convection est de l'ordre du gap entre la couche qui délimite les chambres et l'électrode opposée. Ces rouleaux apparaissent à bas champ, bien en dessous du seuil de l'effet Quincke, ce qui montre que ces deux phénomènes sont découplés. Les rouleaux de convection ont une action répulsive sur les rouleurs

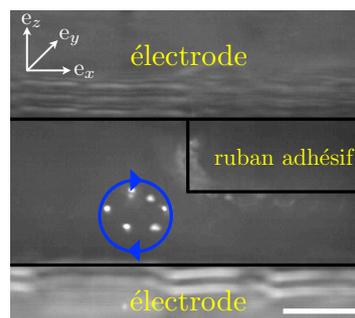


FIGURE 7.2: Vue en coupe d'un dispositif fabriqué avec deux épaisseurs de ruban adhésif double-face. En allumant le champ électrique avant que les particules aient eu le temps de sédimenter, on observe des colloïdes pris dans le rouleau de convection au niveau du bord de la chambre. La taille du rouleau est de l'ordre du gap entre la couche de ruban adhésif qui délimite la chambre et l'électrode du bas. Barre d'échelle :  $110 \mu\text{m}$ .

qui s'approchent des bords de la chambre. Ils définissent une zone inaccessible dont la largeur est de l'ordre de la taille des rouleaux (Fig. 7.3 a et b.). La figure Fig. 7.3 c. montre la fraction surfacique en particules en fonction de la distance au mur. En dessous de  $100 \mu\text{m}$ , la fraction surfacique est quasi-nulle puisque les rouleurs sont repoussés par les rouleaux de convection. La fraction surfacique augmente alors rapidement et pique autour de  $180 \mu\text{m}$  avant de redescendre vers sa valeur moyenne au fur et à mesure qu'on s'éloigne du mur. Le pic de densité autour de  $180 \mu\text{m}$  s'explique par le fait que près du mur, les trajectoires

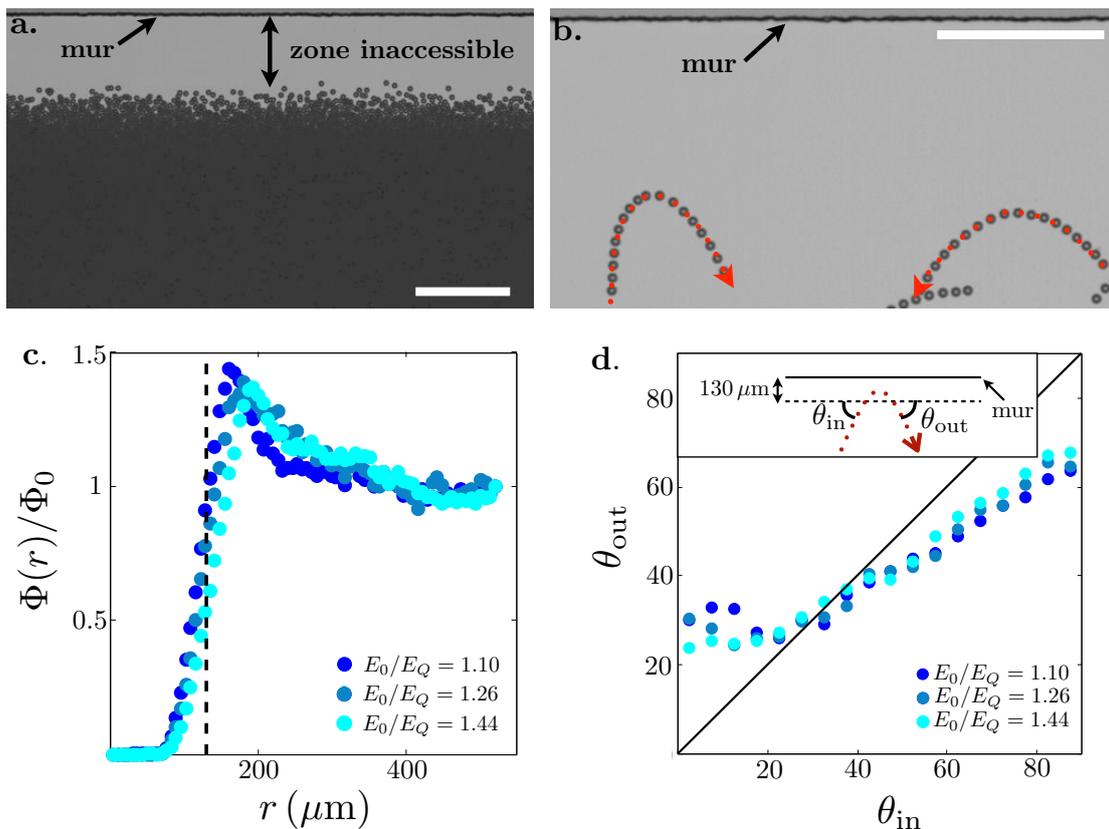


FIGURE 7.3: **a.** Superposition des images d'un film où l'on observe les rouleurs à proximité d'un bord de la chambre. Les rouleaux de convection empêchent les particules d'accéder à une zone dont la largeur est de l'ordre du diamètre des rouleaux. Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ . **b** Superposition de 18 images séparées de 10 ms. En pointillés rouges sont indiquées les trajectoires de deux rouleurs qui sont repoussés par le mur de la chambre. Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ . **c.** Fraction surfacique en particules à la distance  $r$  du mur, normalisée par la fraction surfacique moyenne, en fonction de la distance au mur. La mesure est effectuée pour trois champs électriques différents. La ligne pointillée indique la distance de  $130 \mu\text{m}$  du mur où sont effectuées les mesures d'angles de la figure **d.** **d.** Angle de réflexion des rouleurs en fonction de l'angle d'incidence. Les angles sont mesurés à  $130 \mu\text{m}$  du mur. Inset : définition des angles d'incidence et de réflexion. Les mesures sont effectuées pour trois champs électriques différents. La ligne continue représente une pente de droite 1.

parallèles au mur voient leur poids statistique augmenter puisque les particules font demi-tour dans cette zone. La figure Fig. 7.3 d. montre l'angle de réflexion des particules près du mur en fonction de l'angle d'incidence. On observe que l'angle de réflexion n'est pas égal à l'angle d'incidence. Pour un angle d'incidence supérieur à  $30^\circ$ , l'angle de réflexion est plus petit. Pour un angle d'incidence inférieur à  $30^\circ$ , l'angle de réflexion est plus grand. Le fait que la loi de réflexion sur le mur ne conserve pas les angles n'est pas surprenant puisque dans notre système il n'y a ni conservation de l'énergie ni conservation du moment cinétique. Pour une particule isolée, le confinement n'induit pas d'alignement le long de la paroi, comme cela a pu être observé pour des cellules nageuses [81].

### 7.1.2 Choix de la géométrie de confinement

Le choix de la géométrie du confinement influence les états collectifs que nous allons rencontrer. Pour l'étude de ce chapitre, nous avons utilisé des dispositifs fabriqués à l'aide de deux épaisseurs de ruban adhésif double-face (voir section 6.3). Les chambres où les rouleurs se déplacent sont en forme de pistes d'athlétisme plus ou moins circulaires (Fig. 7.4). Cette géométrie contraint les rouleurs dans la direction radiale mais offre un parcours périodique virtuellement infini dans la direction de la coordonnée curviligne  $s$ . L'intérêt d'utiliser une géométrie présentant une direction périodique est de pouvoir éventuellement observer un état liquide polaire où toutes les particules se déplacent dans la même direction tout en occupant l'espace de manière homogène. Nous avons *a posteriori* vu que cette géométrie avait déjà été suggérée dans la revue [82]. Les pistes utilisées sont soit circulaires (Fig. 7.4 a.) soit allongées dans une direction (Fig. 7.4 b.). Nous avons vérifié que les différences de courbures entre les différents types de pistes n'ont pas d'influence sur les mesures effec-

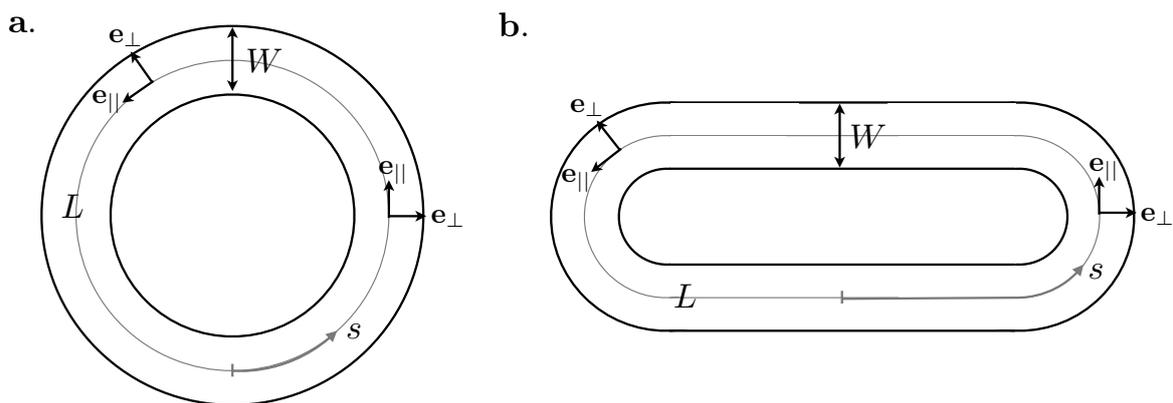


FIGURE 7.4: Chambres en forme de pistes d'athlétisme. **a.** Piste circulaire de largeur  $W$ . La longueur de la piste  $L$  est définie comme la longueur de la ligne grise au milieu de la chambre. **b.** Piste allongée.

tuées dans ce chapitre. Les paramètres géométriques pertinents sont la longueur de la piste  $L$  et sa largeur  $W$ , mais pas sa courbure. Étant donné le rapport d'aspect de nos électrodes (qui sont des lames rectangulaires de dimensions  $75 \times 25$  mm), la forme allongée permet d'obtenir des pistes beaucoup plus longues.

Les différentes pistes utilisées dans l'étude de ce chapitre ont une largeur comprise entre  $500 \mu\text{m} \leq W \leq 5 \text{ mm}$  et une longueur comprise entre  $28 \text{ mm} \leq L \leq 73 \text{ mm}$ . La position dans le dispositif est mesurée par l'abscisse curviligne  $s$ . On utilise la base directe  $(\mathbf{e}_{\parallel}, \mathbf{e}_{\perp})$  où  $\mathbf{e}_{\parallel}$  est parallèle en tout point à la tangente à la piste. Les chambres ont une hauteur  $H = 220 \mu\text{m}$  fixée par l'épaisseur des deux couches de ruban adhésif double-face qui constituent le circuit. Dans toutes les expériences, les particules roulent sur l'électrode du bas.

## 7.2 Transition vers le mouvement collectif

### 7.2.1 Paramètres de contrôle

Notre système possède deux paramètres de contrôle principaux : l'amplitude du champ électrique  $E_0$  et la fraction surfacique moyenne en particules  $\Phi_0$ . L'amplitude du champ peut être changée à tout moment en variant la sortie du générateur de tension. La fraction surfacique en rouleurs peut être modifiée en injectant une solution de concentration différente en particules dans le dispositif microfluidique. Il s'avère que pour la transition vers le mouvement collectif étudiée dans ce chapitre, faire varier  $E_0$  n'a pas d'influence sur la phénoménologie observée. À l'inverse, les variations de la fraction surfacique moyenne  $\Phi_0$  entraînent de dramatiques changements de comportement. Dans la suite, on se place donc à champ électrique fixé tel que  $E_0/E_Q = 1.39$ . Dans le paragraphe suivant, je décris succinctement la phénoménologie observée lorsque l'on fait varier la fraction surfacique moyenne en particules.

### 7.2.2 Description qualitative des phases observées

À basse fraction surfacique,  $\Phi_0 < 3 \times 10^{-3}$ , les rouleurs sont quasi-indépendants et ils forment une phase de type gaz isotrope (Fig. 7.5 b. et vidéo disponible à l'adresse suivante : <http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/IsotropicGaz.mov>). Les rouleurs vont dans des directions aléatoires suivant une loi de probabilité identique à celle déjà montrée dans la figure Fig. 5.4 b. Cette phase ne présente ni ordre orientationnel ni ordre translationnel, c'est un gaz.

Quand on augmente la fraction surfacique légèrement au dessus de la valeur critique  $\Phi_c \approx 3 \times 10^{-3}$ , on observe une transition vers une dynamique collective. Une partie des rouleurs s'agrègent en un "troupeau" dans lequel les particules se déplacent dans la même direction (Fig. 7.5 a., c. et vidéo à l'adresse : <http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/>

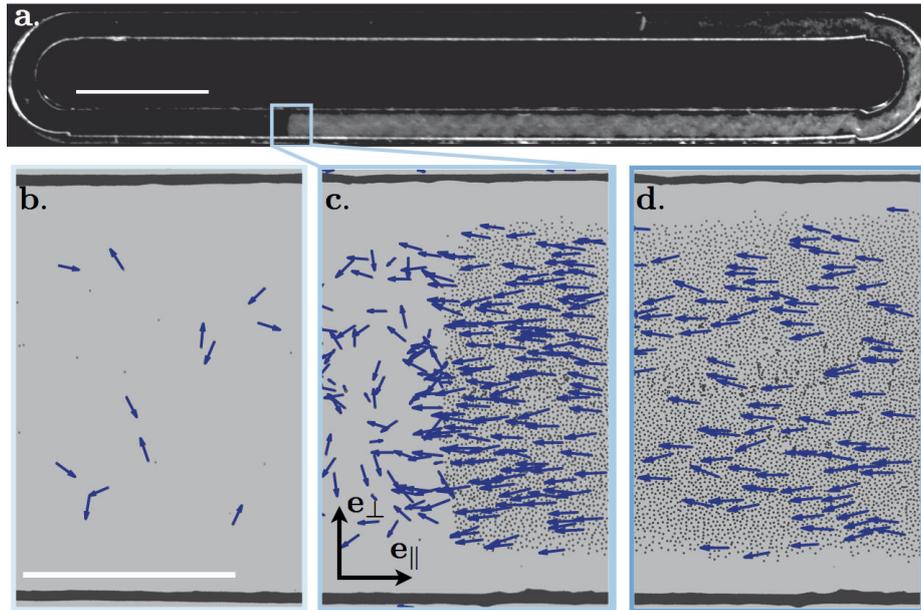


FIGURE 7.5: Transition vers le mouvement collectif dans une chambre en forme de piste d'athlétisme.  $E_0/E_Q = 1.39$ . **a.** Image par microscopie en champ sombre de la chambre. On voit une bande qui se propage le long de la piste. La fraction surfacique moyenne est  $\Phi_0 = 10^{-2}$ . Le carré bleu indique le front de la bande. Barre d'échelle : 5 mm. **b.**, **c.** et **d.** Images zoomées des trois phases observées. Les flèches bleues indiquent les vitesses instantanées de certains rouleurs. Barre d'échelle :  $500 \mu\text{m}$ . **b.** Phase gaz isotrope.  $\Phi_0 = 6 \times 10^{-4}$ . **c.** Zoom sur le front de la bande de la figure **a.** La bande se propage dans un arrière-fond de type gaz isotrope. **d.** Phase liquide polaire.  $\Phi_0 = 1.8 \times 10^{-1}$ . La densité est homogène dans l'ensemble de la piste.

[files/2014/09/S3\\_bandstate\\_closeview.mov](#)). Ce "troupeau", qu'on appellera une bande, se déplace de manière cohérente au sein des particules restantes qui forment une phase de type gaz isotrope identique à celle que l'on a pour  $\Phi_0 < \Phi_c$ . Expérimentalement, Antoine Bricard a montré que la fraction surfacique critique au-delà de laquelle les bandes se forment ne dépend pas (ou très faiblement) de  $E_0$  [83]. Au fur et à mesure qu'on augmente la fraction surfacique en rouleurs, la longueur de la bande augmente. Pour  $\Phi_0 \gtrsim 2 \times 10^{-2}$ , la bande se mord la queue et on obtient alors une phase homogène spatialement dans laquelle toutes les particules se déplacent dans la même direction (Fig. 7.5 **d.** et vidéo à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/S4\\_polarstate\\_closeview.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/S4_polarstate_closeview.mov)). C'est ce qu'on appelle la phase liquide polaire.

Pour étudier de manière quantitative la transition vers le mouvement collectif, nous avons défini un paramètre d'ordre qui prend en compte l'apparition d'ordre orientationnel quand on augmente la fraction surfacique en particules. On définit ainsi un vecteur de polarisation moyenne,  $\Pi_0$ , qui est le module des moyennes d'ensemble et temporelle de l'orientation des

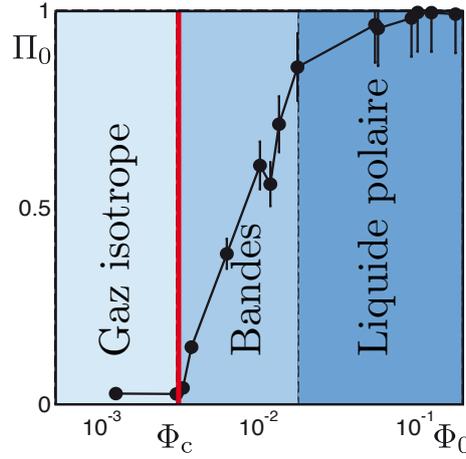


FIGURE 7.6: Diagramme de phase du système. Module de la polarisation moyenne en fonction de la fraction surfacique moyenne en rouleurs. Les barres d'erreurs représentent l'écart-type de la mesure de la polarisation moyenne.

vitesses des rouleurs :

$$\Pi_0 = \left\langle \left| \frac{\mathbf{v}}{v_0} \right| \right\rangle \quad (7.1)$$

où  $\langle \cdot \rangle$  désigne une moyenne temporelle et d'ensemble sur les rouleurs.

Ce paramètre d'ordre nous permet de quantifier le degré d'ordre dans les trois phases décrites ci-dessus. Pour  $\Phi_0 < \Phi_c$ , les rouleurs forment un gaz isotrope. L'orientation des vitesses est aléatoire et on a donc  $\Pi_0 = 0$ . Dans la phase liquide polaire, à  $\Phi_0 \gtrsim 2 \times 10^{-2}$ , les rouleurs se déplacent tous dans la même direction (avec quelques fluctuations bien sûr). Le paramètre d'ordre vaut alors  $\Pi_0 \approx 1$ . Dans la phase bande, une fraction des rouleurs se regroupe dans la bande tandis que l'autre fraction forme un gaz isotrope. Le paramètre d'ordre varie donc de 0 pour  $\Phi_0 \sim \Phi_c$  où la bande est toute petite, à 1 quand la fraction surfacique devient assez importante pour que la bande se morde la queue et qu'on retrouve la phase liquide polaire.

On peut tracer le diagramme de phase de notre système qui montre le module de la polarisation moyenne en fonction de la fraction surfacique moyenne en rouleurs (Fig. 7.6). La rupture de pente à  $\Phi_c \approx 3 \times 10^{-3}$  est la signature d'une transition de phase, par opposition à un crossover entre deux régimes qualitativement similaires. Cette transition résulte d'une brisure spontanée de la symétrie de rotation de l'orientation des particules.

### 7.3 Étude détaillée de la phase bande

Je décris maintenant plus en détail les caractéristiques de la phase bande. Ma principale contribution dans le travail sur la transition vers le mouvement collectif a été de mettre au

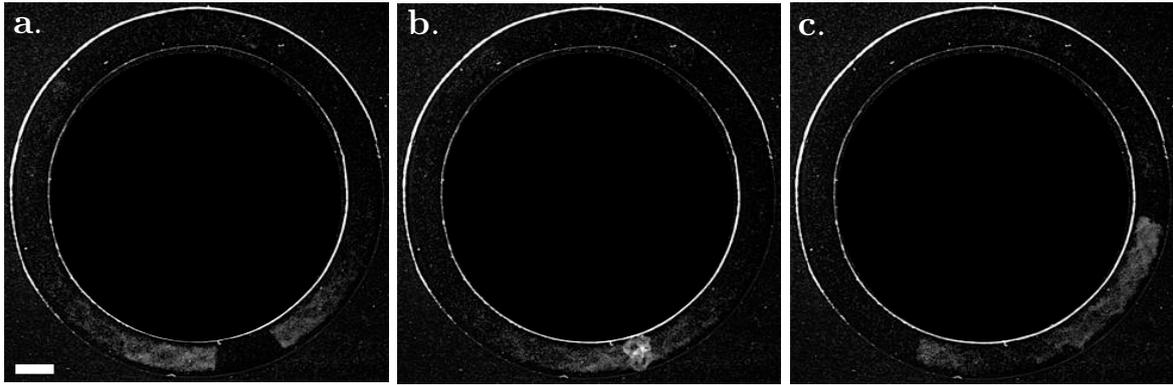


FIGURE 7.7: Images par microscopie en champ sombre de la collision de deux bandes.  $E_0/E_Q = 1.39$  et  $\Phi_0 \sim 4 \times 10^{-3}$ . **a.** Avant la collision. **b.** Pendant la collision. **c.** Après la collision. On voit que la bande la plus grosse emporte une partie des particules de la bande la plus petite. Barre d'échelle : 1 mm.

point le montage de microscopie en champ sombre (voir section. 6.5) et de l'utiliser pour effectuer des mesures macroscopiques quantitatives sur les bandes. La phase bande se développe pour des fractions surfaciques en rouleurs telles que  $3 \times 10^{-3} < \Phi_0 < 2 \times 10^{-2}$ . Lorsqu'on allume le champ électrique, des fluctuations de densités apparaissent presque instantanément dans la phase gaz isotrope. Dans les clusters les plus denses, les rouleurs alignent leurs vitesses et les clusters se mettent à se déplacer de manière cohérente dans un sens ou l'autre le long de la piste. S'ensuit alors des collisions (pour les clusters qui vont dans des sens opposés) ou des évènements de coalescence (les clusters les plus gros rattrapent les plus petits). L'état stationnaire est atteint lorsqu'une seule bande subsiste dans le canal. La figure Fig. 7.7 montre une image par microscopie en champ sombre de la collision de deux bandes dans le régime transitoire (vidéo à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c3\\_p2\\_collision\\_small.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c3_p2_collision_small.mov)). Dans tous nos dispositifs, l'état stationnaire est toujours un état où une seule bande subsiste. Dans ce travail de thèse, nous n'avons pas étudié en détail l'état transitoire et nous nous sommes concentrés sur l'état bande stationnaire. L'étude du régime transitoire sera sûrement l'objet d'un travail expérimental prochain dans l'équipe. Lorsque le régime stationnaire est atteint, on observe une seule bande qui se propage sans se déformer à travers une phase de type gaz isotrope. Le sens de propagation de la bande est déterminé par les fluctuations de densités initiales qui elles-mêmes émergent des brisures spontanées de symétrie à la base de l'électro-rotation de Quincke. Ainsi, le sens de propagation de la bande est aléatoire. Si on éteint et qu'on rallume le champ, on peut obtenir une bande se déplaçant dans le sens inverse. Après quelques tours de piste, la bande ne se déforme plus (voir Fig. 7.8 a.). Son profil de densité est fortement asymétrique avec un front très dense et une queue où la fraction surfacique

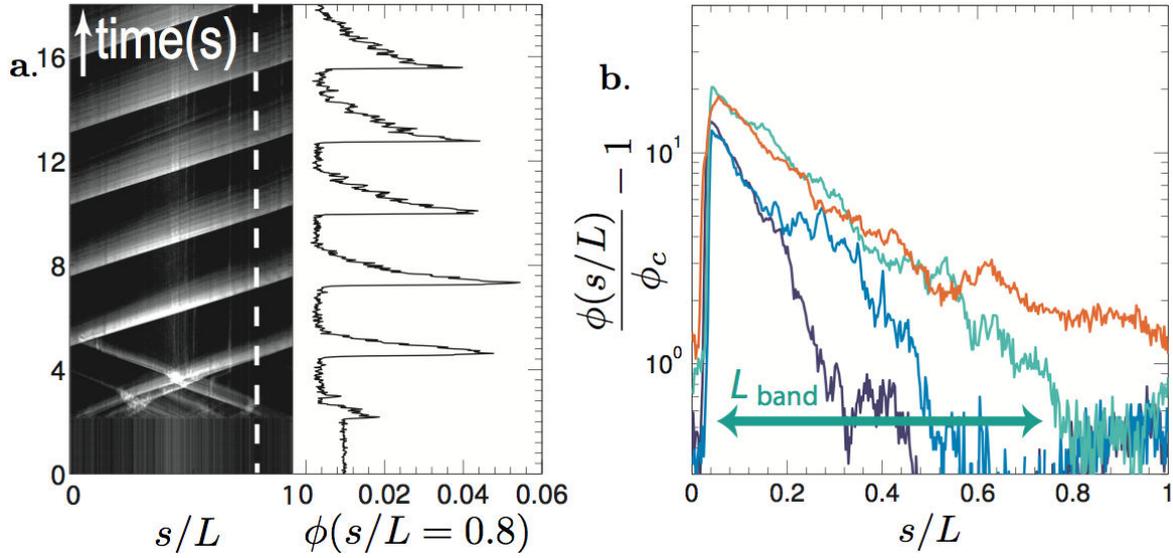


FIGURE 7.8: Caractérisation de la phase bande. **a.** A gauche, diagramme spatio-temporel de la fraction surfacique locale  $\Phi(s,t)$  en niveaux de gris. L'intensité lumineuse est proportionnelle à la fraction surfacique. A  $t \sim 2$  s le champ électrique est allumé. Après un court régime transitoire où plusieurs bandes se collisionnent, on atteint l'état stationnaire à une bande. A droite, variation temporelle de la fraction surfacique locale en un point de la piste qui correspond à la ligne blanche en pointillés de la figure de gauche. Après 3-4 tours, le profil de la bande est stationnaire. **b.** Profil à un instant  $t$  de la fraction surfacique locale dans la piste (moins la fraction surfacique critique et normalisée par celle-ci). L'ordonnée est en échelle logarithmique. La décroissance linéaire indique donc un profil exponentiel décroissant de la fraction surfacique dans la bande. Les quatre courbes correspondent à des fractions surfaciques moyennes différentes :  $\Phi_0 = 5.3 \times 10^{-3}$  pour le bleu foncé,  $\Phi_0 = 7.8 \times 10^{-3}$  pour le bleu,  $\Phi_0 = 1.0 \times 10^{-2}$  pour le cyan et  $\Phi_0 = 1.5 \times 10^{-2}$  pour l'orange.

en rouleurs décroît petit à petit jusqu'à celle de la phase gaz isotrope. Le montage par microscopie en champ sombre nous permet d'obtenir des images grand champ de la piste dans sa totalité (Fig. 7.7). Après calibration, nous sommes capables de relier l'intensité lumineuse locale avec la fraction surfacique locale en rouleurs. Cela nous permet d'effectuer des mesures macroscopiques quantitatives sur les bandes. La figure Fig. 7.8 a. montre une représentation spatio-temporelle de la fraction surfacique locale dans l'ensemble de la piste. On peut également se placer en un point donné de la piste et regarder l'évolution temporelle de la fraction surfacique locale. Avec ces mesures, nous avons pu vérifier que l'état bande est stationnaire sur plusieurs dizaines de tours de piste. Pour étudier la forme de la bande, on peut tracer la fraction surfacique locale en fonction de l'abscisse curviligne dans la piste (Fig. 7.8 b.). On observe que le profil de la densité surfacique décroît de manière exponentielle du front vers la queue. La fraction surfacique du front est constante et ne dé-

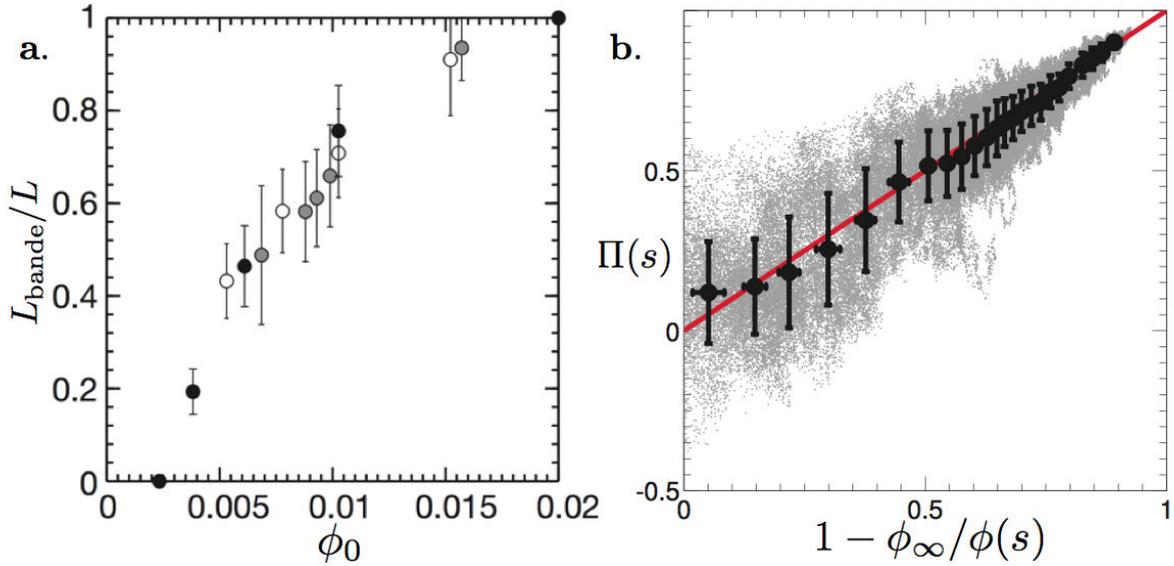


FIGURE 7.9: **a.** Longueur de la bande divisée par la longueur de la piste en fonction de la fraction surfacique moyenne en rouleurs. Ce ratio augmente avec  $\Phi_0$  mais est indépendant de la longueur de la piste. Les points de couleurs différentes correspondent à des pistes de longueurs différentes.  $L = 28$  mm pour les points blancs,  $L = 50$  mm pour les gris et  $L = 73$  mm pour les noirs. Les barres d'erreur correspondent à l'incertitude estimée sur la mesure de  $L_{\text{bande}}$ . **b.** Polarisation locale en fonction de  $1 - \Phi_\infty/\Phi(s)$ . Chaque point gris correspond à une mesure locale. Les points noirs correspondent à une moyenne sur 5000 points gris. Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type. La courbe rouge est la prédiction théorique Eq. 7.2.

pend pas de la fraction surfacique moyenne en rouleurs (sauf très près de  $\Phi_c$ ). La fraction surfacique au niveau de la queue de la bande,  $\Phi_\infty$ , est également constante et très proche de  $\Phi_c$ . Ces observations sont similaires à celles faites dans les simulations numériques du modèle de Vicsek à deux dimensions avec des conditions aux limites périodiques [35, 84]. Des mesures microscopiques réalisées par Antoine Bricard [83] ont permis de relier la fraction surfacique locale,  $\Phi(s, t)$  avec la polarisation locale,  $\Pi(s, t)$ . On observe qu'au niveau du front de la bande, la polarisation locale est proche de 1. La cohérence de la bande diminue ensuite continûment jusqu'à la queue de la bande où  $\Pi(s, t) \approx 0$ . On montre en fait qu'il existe une relation universelle entre la fraction surfacique locale et la polarisation (Fig. 7.9 b.). Cette relation ne dépend ni de la vitesse des rouleurs  $v_0$  ni de la fraction surfacique moyenne en rouleurs  $\Phi_0$ . On peut montrer que cette relation doit être vérifiée lorsque l'on a propagation d'ondes de densité avec conservation du nombre de particules et une vitesse de propagation égale à la vitesse de particules individuelles [71] :

$$\Pi(s, t) = 1 - \frac{\Phi_\infty}{\Phi(s, t)} \quad (7.2)$$

Cette observation nous conforte dans l'idée que l'état bande est un véritable état stationnaire qui correspond à un flux net de particules.

On a déjà dit que lorsque l'on augmente la fraction surfacique moyenne en rouleurs, la longueur de la bande augmente (Fig. 7.8 b.) . Il est également intéressant de mesurer la longueur de la bande en fonction de la longueur de la piste. Ce que l'on observe et qu'il n'y a pas de longueur intrinsèque aux rouleurs qui fixe la longueur de la bande. On montre en fait que la densité moyenne  $\Phi_0$  ne fixe pas la longueur de la bande mais seulement la fraction de la piste occupée par la bande (Fig 7.9 a.). Cela découle de la conservation du nombre de particules. Puisque la fraction surfacique au front et en queue de bande sont des constantes et qu'entre les deux la fraction surfacique décroît de manière bien définie (décroissance exponentielle), il faut obligatoirement que la longueur de la bande soit proportionnelle à la longueur de la piste.

Notons enfin que si l'état bande correspond à un flux net de particules, les rouleurs peuvent bien sûr passer de la phase gaz isotrope à la bande et réciproquement. A l'avant de la bande, les rouleurs de la phase gaz sont agglomérés et forment le nouveau front de la bande. A l'arrière où la polarisation est faible,  $\Pi(s, t) \approx 0$ , des rouleurs sortent de la bande en permanence.

## 7.4 L'état liquide polaire

Lorsque l'on augmente la fraction surfacique moyenne en rouleurs, la fraction de la piste occupée par la bande augmente. Au dessus de  $\Phi_0 \approx 2 \times 10^{-2}$ , la bande se mord la queue et la fraction surfacique en rouleurs s'homogénéise lentement. On aboutit alors à un état appelé liquide polaire où toutes les particules se déplacent dans la même direction et la fraction surfacique est homogène. Même si j'ai pu observer cet état dans mes dispositifs (Fig. 7.10), il a été étudié en détail par Antoine Bricard [83]. Je mentionne au passage ce résultat puisque bien que l'état liquide polaire ait été prédit théoriquement dans de nombreux articles, c'est la première fois qu'il est observé expérimentalement.

Mentionnons également une caractéristique étonnante de l'état liquide polaire dans notre système. Les études théoriques et numériques sur la matière active polaire prédisent des fluctuations géantes de densité dans la phase polaire [82, 42, 85]. Or Antoine Bricard a montré que les fluctuations de densité dans la phase liquide polaire des rouleurs de Quincke sont normales à toutes les échelles [83]. Ce résultat inattendu trouve son explication dans la spécificité des interactions hydrodynamiques entre les particules dans notre système qui conduisent à une stabilisation de la phase polaire.

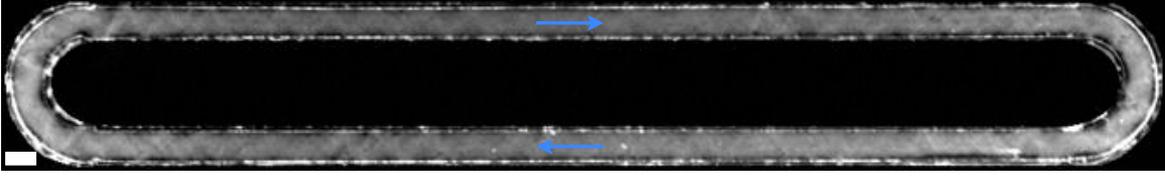


FIGURE 7.10: Image par microscopie en champ sombre de la phase liquide polaire.  $E_0/E_Q = 1.39$  et  $\Phi_0 \sim 1.8 \times 10^{-1}$ . Tous les rouleurs se déplacent en moyenne dans la même direction (indiquée par les flèches bleues). La densité est homogène le long de la piste. Barre d'échelle : 1 mm.

## 7.5 Quelques éléments de théorie

Un des atouts majeurs de notre système est que les interactions entre les rouleurs au niveau microscopique sont connues. La modélisation théorique du système des rouleurs de Quincke a été effectuée par Jean-Baptiste Caussin et Denis Bartolo. En adoptant une approche de type théorie cinétique à la Boltzmann, ils ont pu expliquer de manière théorique un grand nombre des observations faites ci-dessus. Dans ce paragraphe, je présente très brièvement quelques résultats de la modélisation. Les lecteurs et lectrices avides de plus de détails peuvent consulter le document complémentaire de [71].

Dans notre système, les rouleurs interagissent via des couplages électrostatiques et hydrodynamiques. En effet, la distribution de charge non nulle à la surface d'un rouleur peut affecter la polarisation et donc la vitesse des particules voisines. Aussi, le déplacement du fluide environnant causé par un rouleur en mouvement induit un couplage hydrodynamique entre les particules. En supposant que toutes les interactions sont additives de paire, on peut décrire la dynamique d'une assemblée de rouleurs sous une forme compacte faisant intervenir un potentiel effectif :

$$\dot{\mathbf{r}}_i = v_0 \hat{\mathbf{p}}_i \quad (7.3)$$

$$\dot{\theta}_i = \frac{1}{\tau} \sum_{i \neq j} \frac{\partial}{\partial \theta_i} H_{\text{eff}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, \hat{\mathbf{p}}_i, \hat{\mathbf{p}}_j) + \sqrt{2D_r} \zeta_i(t) \quad (7.4)$$

où  $\mathbf{r}_i$  désigne la position du rouleur  $i$ . L'orientation de sa vitesse,  $\hat{\mathbf{p}}_i$ , fait un angle  $\theta_i$  avec l'axe des  $x$ . Le point correspond à une dérivation temporelle.  $D_r$  est le coefficient de diffusion rotationnelle et  $\zeta_i(t)$  est un bruit blanc Gaussien.  $D_r$  est le seul coefficient phénoménologique du modèle. A l'ordre dominant en  $a/r$  ( $a$  est le rayon d'une particule), le potentiel effectif est donné par :

$$H_{\text{eff}}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{p}}_i, \hat{\mathbf{p}}_j) = A(r) \hat{\mathbf{p}}_i \cdot \hat{\mathbf{p}}_j + B(r) \hat{\mathbf{p}}_i \cdot \mathbf{r} + C(r) \hat{\mathbf{p}}_i \cdot (2\hat{\mathbf{r}} - \mathbb{I}) \cdot \hat{\mathbf{p}}_j \quad (7.5)$$

De manière remarquable,  $H_{\text{eff}}$  ne dépend pas du champ électrique  $E_0$  et donc ne dépend pas de la vitesse des rouleurs. En fait, ce potentiel n'est pas spécifique aux rouleurs de

Quincke mais il peut s'appliquer à tous les systèmes où des particules de vitesse constante interagissent via des interactions d'alignement à courte portée (le potentiel comprend tous les termes autorisés par les symétries de la phase la moins ordonnée du système, c'est à dire la phase gaz isotrope qui est invariante par rotation).

Décrivons maintenant brièvement les trois termes qui interviennent dans le potentiel effectif. Dans le premier terme,  $A(r)$  est une fonction positive. Ce terme favorise donc l'alignement de l'orientation des vitesses. Il rassemble les contributions d'interactions hydrodynamiques à courte portée et d'interactions électrostatiques. Une comparaison des préfacteurs permet de montrer que la contribution hydrodynamique est dominante dans notre système. Ce terme est écranté sur une distance de l'ordre de la hauteur de la chambre. Ce terme d'alignement est responsable de la transition vers une dynamique collective [71].

Le second terme, où  $B(r)$  est une fonction positive, correspond à la répulsion électrostatique entre les dipôles des rouleurs. Il est aussi écranté sur une distance de l'ordre de la hauteur de la chambre. En moyenne, ce terme n'induit pas d'alignement. En revanche, il est certainement à l'origine de la stabilité de la phase liquide polaire à haute fraction surfacique puisqu'il stabilise les ondes de compression dans la phase polaire. Enfin, le troisième terme est lui de longue portée puisque le coefficient  $C(r)$  décroît de manière algébrique en  $1/r^2$ . Ce terme correspond à la perturbation dipolaire induite à longue portée par une particule en mouvement dans un fluide confiné. Son amplitude est faible devant celle du premier terme puisqu'elle est proportionnelle à  $a/H \ll 1$ . En moyenne, ce terme n'induit pas d'alignement. Néanmoins, il semble jouer un rôle déterminant dans la suppression des fluctuations géantes de densité dans la phase liquide polaire puisqu'il stabilise les perturbations de divergence non nulle ("splay modes") qui sont à l'origine des fluctuations géantes de densité [86].

En utilisant une approche de type cinétique à la Boltzmann, on peut déduire des Eqs. 7.3 et 7.4 des équations hydrodynamiques pour le champ de densité et le champ de polarisation [71]. L'approximation de type champ moyen est ici justifiée par le fait que les corrélations de positions sont faibles dans les trois phases observées dans notre système. Pour des fractions surfaciques en rouleurs proches de  $\Phi_c$ , les équations hydrodynamiques prédisent l'instabilité de l'état gaz isotrope et la transition vers le mouvement collectif. Cette transition émerge de la compétition entre les interactions d'alignement qui favorisent l'ordre et la diffusion rotationnelle des rouleurs. En accord avec nos observations expérimentales, la théorie prédit que la fraction surfacique à laquelle intervient la transition ne dépend pas de la vitesse des rouleurs, ou de manière équivalente du champ appliqué  $E_0$ . Dans la phase liquide polaire, les équations de champ moyen permettent d'expliquer la stabilité par rapport aux fluctuations de densité ainsi que la suppression des fluctuations géantes de densité. Encore une fois, il est important de noter que tous les coefficients qui interviennent dans le potentiel effectif Eq. 7.5 sont connus et que le coefficient de diffusion  $D_r$  est le seul paramètre phénoménologique du modèle.

## 7.6 Influence de la géométrie du confinement

Dans nos dispositifs, c'est la périodicité angulaire de la piste qui nous permet d'observer la phase liquide polaire ainsi que la propagation de bandes qui ne se déforment pas. Si on place un mur au milieu de la piste, le liquide polaire ne peut plus être stationnaire puisque les particules vont rebondir sur le mur et qu'on ne peut plus obtenir de phase homogène où toutes les particules se déplacent dans la même direction. Ainsi la géométrie du confinement conditionne les dynamiques collectives que l'on peut observer au dessus de  $\Phi_c$ . Dans ce paragraphe, je mentionne brièvement les états que j'ai pu observer en modifiant la géométrie du confinement. La caractérisation de toutes ces phases demandera un travail considérable qui sera sûrement l'objet de futurs travaux.

### 7.6.1 Bande rebondissante

Dans les pistes rectangulaires à haut rapport d'aspect (par exemple une chambre rectangulaire de longueur  $L = 20$  mm et de largeur  $W = 1$  mm), on observe pour  $\Phi_c < \Phi_0 < 2 \times 10^{-2}$  un état bande proche de celui observé dans les pistes d'athlétisme à la différence près que la bande est maintenant obligée de rebondir sur les murs latéraux (Fig. 7.11 et vidéo à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/S5\\_bouncingband\\_x4.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/S5_bouncingband_x4.mov)). Si la piste est assez longue ( $L$  grande devant  $L_{\text{bande}}$ ), on peut observer la bande au milieu de la piste et constater que son profil est stationnaire (Fig. 7.12). Il est alors possible de reproduire quantitativement toutes les mesures de la section 7.3 en utilisant des pistes rectangulaires de longueurs suffisantes. On utilisera ce genre de pistes pour l'étude du chapitre 8 sur le mouvement collectif dans des milieux désordonnés pour profiter à la fois de notre caractérisation complète de l'état bande de la section 7.3 tout en conservant une géométrie rectangulaire simple. Si on augmente la fraction surfacique

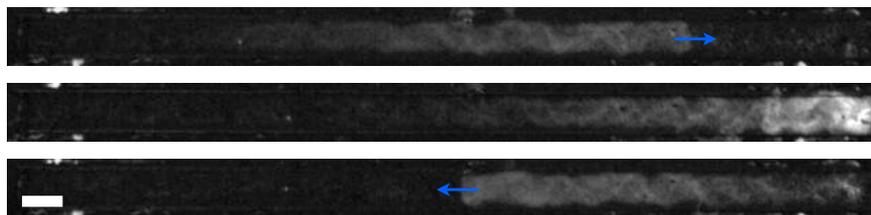


FIGURE 7.11: Image par microscopie en champ sombre du rebond d'une bande sur un mur d'une piste rectangulaire. La piste mesure 20 mm de long pour 1 mm de large. Le champ appliqué est tel que  $E_0/E_Q = 1.39$ .  $\Phi_0 \sim 10^{-2}$ . Première image : bande avant le rebond. La flèche bleue indique la direction de propagation. Deuxième image : rebond de la bande sur le mur de droite. Troisième image : bande après le rebond. Le profil de la bande au milieu de la piste est stationnaire. Barre d'échelle : 1 mm.

moyenne au dessus de  $2 \times 10^{-2}$ , la dynamique se complexifie et devient dépendante au champ électrique et au rapport d'aspect de la piste.

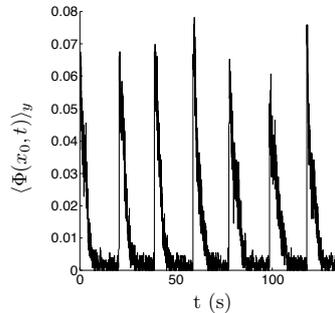


FIGURE 7.12: Profil de densité stationnaire d'une bande rebondissant dans un canal rectangulaire de largeur 1 mm et de longueur  $15 \mu\text{m}$ . La fraction surfacique en particules est mesurée au centre de la piste et est moyennée sur la largeur de celle-ci.  $\Phi_0 \sim 10^{-2}$  et  $E_0/E_Q = 1.39$ .

### 7.6.2 Bande rebondissante et allée de vortex

Pour des pistes avec un rapport d'aspect légèrement plus petit (par exemple  $L = 18 \text{ mm}$  et  $W = 2.5 \text{ mm}$ ), on observe pour des fractions surfaciques élevées un comportement qui dépend maintenant du champ électrique. Ainsi, à bas champ, on obtient un état stationnaire sous forme d'une allée de vortex à quatre branches (Fig. 7.13 et vidéo à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/alleepvortex\\_x4.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/alleepvortex_x4.mov)). La taille des vortex est fixée par la longueur du plus petit côté de la piste. Des défauts peuvent apparaître si la longueur de la piste n'est pas un multiple de sa largeur. Pour des champs plus élevés, l'allée de vortex se déstabilise et on retrouve un état bande rebondissante. Cette transition est complexe puisqu'elle est en fait dépendante de trois paramètres : la fraction surfacique, le champ électrique et le rapport d'aspect de la piste. La caractérisation de la transition entre la phase bande rebondissante et la phase allée de vortex demande donc un travail d'exploration des paramètres très important qui devra faire l'objet d'un travail futur.

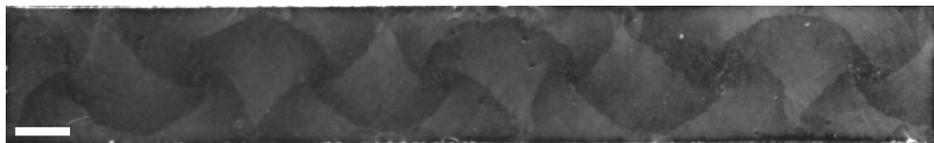


FIGURE 7.13: Image par microscopie en champ sombre d'une allée de vortex dans une piste rectangulaire de longueur  $L = 18 \text{ mm}$  et de largeur  $W = 2.5 \text{ mm}$ .  $E_0/E_Q = 1.39$  et  $\Phi_0 \sim 0.18$ . Barre d'échelle : 1 mm.

### 7.6.3 Vortex unique

Pour un confinement carré (rapport d'aspect égal à 1), on observe l'établissement d'un vortex unique à quatre bras spiraux (Fig. 7.14 et vidéo à l'adresse : <http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/0705vortex.mov>). Le nombre de bras du vortex sont la signature de la symétrie d'ordre 4 du confinement. Ainsi pour un confinement circulaire, on obtient des vortex invariants par rotation alors que dans un confinement triangulaire on obtient des vortex à trois bras [83]. Les bras spiraux présentent des discontinuités de densité et d'orientation des vitesses surprenantes (Fig. 7.14). La compréhension et la caractérisation des états vortex à bras spiraux demeurent à l'état embryonnaire et devront faire l'objet de travaux futurs.

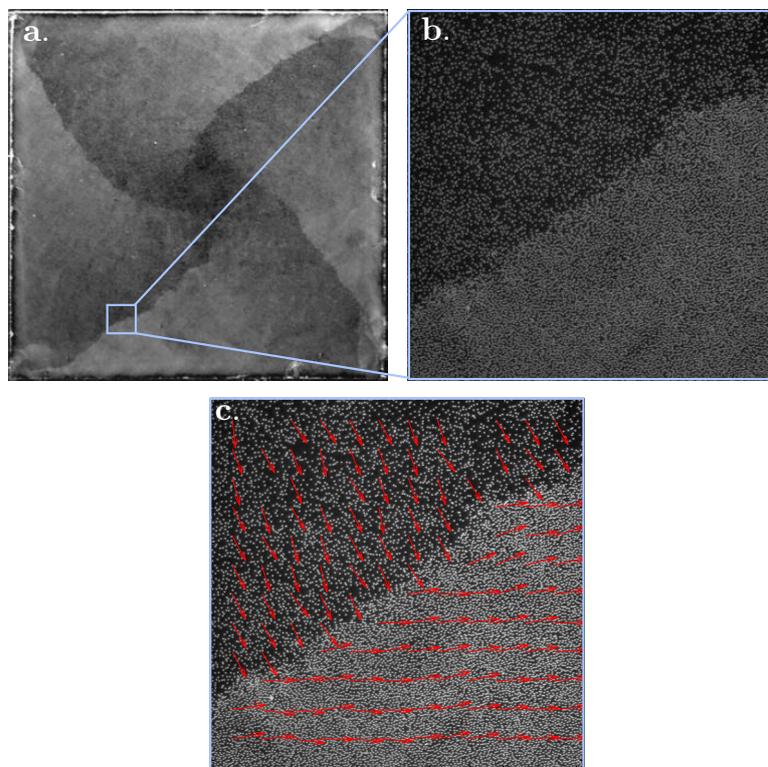


FIGURE 7.14: Images par microscopie en champ sombre de l'état vortex à 4 branches dans une chambre carrée de côté 10 mm. Toutes les images ont été prises à  $E_0/E_Q = 1.39$ .  $\Phi_0 \sim 0.11$ . **a.** Image grand champ de la chambre. **b.** Zoom sur un bras du vortex. On observe nettement une discontinuité de densité. **c.** Champ de vitesse obtenu par PIV (particule image velocimetry) au niveau de la discontinuité de densité. Celle-ci s'accompagne d'une discontinuité de l'orientation de la vitesse de rouleurs.

## 7.7 Article

# Emergence of macroscopic directed motion in populations of motile colloids

Antoine Bricard<sup>1\*</sup>, Jean-Baptiste Caussin<sup>1,2\*</sup>, Nicolas Desreumaux<sup>1</sup>, Olivier Dauchot<sup>3</sup> & Denis Bartolo<sup>1,2</sup>

From the formation of animal flocks to the emergence of coordinated motion in bacterial swarms, populations of motile organisms at all scales display coherent collective motion. This consistent behaviour strongly contrasts with the difference in communication abilities between the individuals. On the basis of this universal feature, it has been proposed that alignment rules at the individual level could solely account for the emergence of unidirectional motion at the group level<sup>1–4</sup>. This hypothesis has been supported by agent-based simulations<sup>1,5,6</sup>. However, more complex collective behaviours have been systematically found in experiments, including the formation of vortices<sup>7–9</sup>, fluctuating swarms<sup>7,10</sup>, clustering<sup>11,12</sup> and swirling<sup>13–16</sup>. All these (living and man-made) model systems (bacteria<sup>9,10,16</sup>, biofilaments and molecular motors<sup>7,8,13</sup>, shaken grains<sup>14,15</sup> and reactive colloids<sup>11,12</sup>) predominantly rely on actual collisions to generate collective motion. As a result, the potential local alignment rules are entangled with more complex, and often unknown, interactions. The large-scale behaviour of the populations therefore strongly depends on these uncontrolled microscopic couplings, which are extremely challenging to measure and describe theoretically. Here we report that dilute populations of millions of colloidal rolling particles self-organize to achieve coherent motion in a unique direction, with very few density and velocity fluctuations. Quantitatively identifying the microscopic interactions between the rollers allows a theoretical description of this polar-liquid state. Comparison of the theory with experiment suggests that hydrodynamic interactions promote the emergence of collective motion either in the form of a single macroscopic ‘flock’, at low densities, or in that of a homogenous polar phase, at higher densities. Furthermore, hydrodynamics protects the polar-liquid state from the giant density fluctuations that were hitherto considered the hallmark of populations of self-propelled particles<sup>2,3,17</sup>. Our experiments demonstrate that genuine physical interactions at the individual level are sufficient to set homogeneous active populations into stable directed motion.

Our system consists of large populations of colloids capable of self-propulsion and of sensing the orientation of their neighbours solely by means of hydrodynamic and electrostatic mechanisms. We take advantage of an overlooked electrohydrodynamic phenomenon known as Quincke rotation<sup>18,19</sup> (Fig. 1a). When an electric field,  $E_0$ , is applied to an insulating sphere immersed in a conducting fluid, above a critical field amplitude,  $E_Q$ , the charge distribution at the sphere’s surface is unstable to infinitesimal fluctuations. This spontaneous symmetry breaking results in a net electrostatic torque, which causes the sphere to rotate at a constant speed around a random direction transverse to  $E_0$  (ref. 18). We exploit this instability to engineer self-propelled colloidal rollers. We use poly(methyl methacrylate) beads of radius  $a = 2.4 \mu\text{m}$  diluted in an hexadecane solution filling the gap between two conducting glass slides. Once the particles have sedimented on the bottom electrode, we apply a homogeneous electric field, and indeed observe them to start rolling at high speed (Fig. 1a). Isolated rollers, as

we refer to these particles, travel in random directions (Fig. 1b). Their velocity,  $v_0$ , is set by  $E_0$  and scales as  $[(E_0/E_Q)^2 - 1]^{1/2}$  (Fig. 1c and Supplementary Methods).

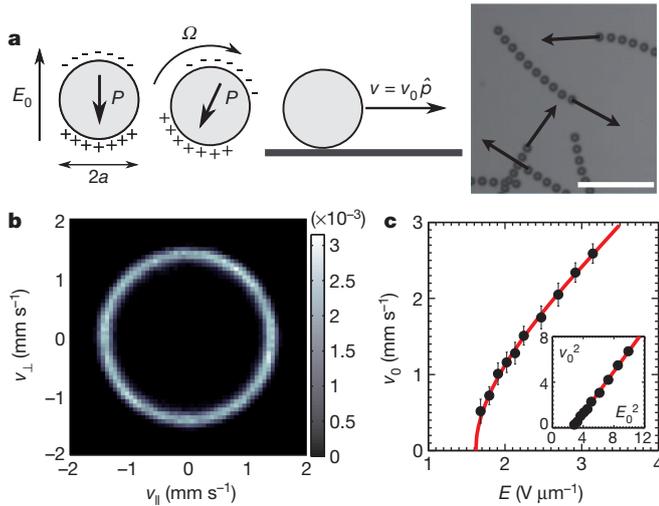
To study the emergence of collective unidirectional motion, we electrically confine the roller populations in racetracks periodic in the curvilinear coordinate,  $s$ , that measures position along the track. Their width is  $500 \mu\text{m} < W < 5 \text{mm}$  (Fig. 2a and Methods). During a typical 10-min-long experiment, millions of rollers travel over distances as large as  $10^5$ – $10^6$  particle radii, which makes it possible to investigate exceptionally large-scale dynamics. At low area fraction,  $\phi_0$ , the rollers form an isotropic gaseous phase. They all move at the same velocity in random directions, as would an isolated particle (Fig. 2b and Supplementary Video 1). On increasing  $\phi_0$  above a critical value,  $\phi_c$ , we observe a clear transition to collective motion. A macroscopic fraction of the rollers self-organizes and its constituents cruise coherently in the same direction (Fig. 2c, d and Supplementary Videos 2–4). More quantitatively, we define a polarization order parameter,  $\Pi_0$ , as the modulus of the time and ensemble average of the particle-velocity orientation. This parameter increases sharply with  $\phi_0$  and has a slope discontinuity at  $\phi_c = 3 \times 10^{-3}$ , revealing the strongly collective nature of the transition (Fig. 2e). Remarkably,  $\phi_c$  is a material constant: it is independent of the electric field amplitude.

For area fractions higher than but close to  $\phi_c$ , small density excitations nucleate from an unstable isotropic state and propagate in random directions. After complex collisions and coalescence events, the system phase separates to form a single macroscopic band that propagates at a constant velocity,  $c_{\text{band}}$ , through an isotropic gaseous phase (Figs 2a, c and 3a and Supplementary Videos 2 and 3). No stationary state involving more than a single band was observed even in the largest systems (10-cm long). The velocity  $c_{\text{band}}$  is found to be very close to the single-particle velocity,  $v_0$ , at the front of the band. The bands are coupled to a net particle flux: they are colloidal flocks travelling through an isotropic phase. Their density profile is strongly asymmetric, unlike the slender bands observed in dense motility assays<sup>7</sup>. This marked asymmetry is akin to that found in one-dimensional, agent-based models<sup>20</sup>. It might be promoted by the high aspect ratio of the confinement. The local area fraction at curvilinear coordinate  $s$  and time  $t$ ,  $\phi(s, t)$ , increases sharply with  $s$  and then decays exponentially to a constant value,  $\phi_\infty$ , which is very close to the critical volume fraction,  $\phi_c$  (Fig. 3b). This behaviour is similar to that found in numerical simulations of the celebrated two-dimensional Vicsek model<sup>21,22</sup>. Remarkably, the bands have no intrinsic scale and their length,  $L_{\text{band}}$ , is set by particle-number conservation only. This result is readily inferred from Fig. 3c, which shows that the bands span a fraction of the racetrack that merely increases with  $\phi_0$  regardless of the overall curvilinear length,  $L$ .

Looking now at the local polarization, we observe that the colloidal flock loses its internal coherence away from the band front as  $\Pi(s, t)$  decays continuously to zero along the band. Quantitatively,  $\phi(s, t)$  and  $\Pi(s, t)$  are related in a universal manner irrespective of both the particle velocity and the mean volume fraction (Fig. 3d). All our data collapse

<sup>1</sup>PMMH, CNRS UMR7636, ESPCI-ParisTech, Université Paris Diderot and Université Pierre et Marie Curie, 10 rue Vauquelin, 75005 Paris, France. <sup>2</sup>Laboratoire de Physique, Ecole Normale Supérieure de Lyon, CNRS UMR5672, 46 allée d’Italie, F69007 Lyon, France. <sup>3</sup>EC2M, CNRS UMR7083 Gulliver, ESPCI-ParisTech, 10 rue Vauquelin, 75005 Paris, France.

\*These authors contributed equally to this work.



**Figure 1 | Single-roller dynamics.** **a**, Sketch of the Quincke rotation and of the self-propulsion mechanisms of a colloidal roller characterized by its electric polarization,  $P$ , and superposition of ten successive snapshots of colloidal rollers. Time interval, 5.6 ms; scale bar, 50  $\mu\text{m}$ . **b**, Probability distribution of the velocity vector ( $v_{\parallel}$ ,  $v_{\perp}$ ) for isolated rollers:  $v_{\parallel}$  corresponds to the projection of the velocity on the direction tangent to the racetrack (Fig. 2);  $v_{\perp}$  is normal to  $v_{\parallel}$ . The probability distribution involves more than  $1.4 \times 10^5$  measurements of instantaneous speed. **c**, Roller velocity,  $v_0$ , plotted versus the field amplitude,  $E_0$ . Inset,  $v_0^2$  versus  $E_0^2$ . The black dots represent the maximum of the probability distribution. Error bars, 1 s.d.

on a single master curve solely parameterized by the particle fraction,  $\phi_{\infty}$ , away from the band:  $\Pi(s, t) = 1 - \phi_{\infty} / \phi(s, t)$ . As it turns out, this relation corresponds to particle-number conservation in a system where density and polarization waves propagate steadily at a velocity  $v_0$  (ref. 22 and Supplementary Methods). This observation unambiguously demonstrates that the band state corresponds to a genuine stationary flocking phase of colloidal active matter.

On further increasing the area fraction to more than  $\phi_0 \approx 2 \times 10^{-2}$ , transient bands eventually catch up with themselves along the periodic direction and form a homogeneous polar phase (Fig. 2d and Supplementary Video 4) in which the velocity distribution condenses on a single orientation of motion (Fig. 4a, to be contrasted with the perfectly

isotropic distribution for fractions less than  $\phi_c$  in Fig. 1b). Conversely, the roller positions are weakly correlated, as evidenced by the shape of the pair-distribution function, which is similar to that found in low-density molecular liquids (Fig. 4b). We also emphasize that the density fluctuations are normal at all scales (Fig. 4c). This is experimental observation of a polar-liquid phase of active matter. The existence of a polar-liquid phase was theoretically established yet had not been observed in any prior experiment involving active materials. Until now, collective motion has been found to occur in the form of patterns with marked density, orientational heterogeneities or both<sup>7,10,13,14,16</sup>. Furthermore, in contrast with the present observations, giant density fluctuations are considered to be a generic feature of the uniaxially ordered states of liquids comprising self-propelled particles<sup>2,3,17</sup>. We resolve this apparent contradiction below and quantitatively explain our experimental observations.

From a theoretical perspective, the main advantage offered by the rollers is that their interactions are clearly identified. We show in Supplementary Methods how to establish the equations of motion of Quincke rollers interacting through electrostatic and far-field hydrodynamic interactions. They take a compact form both for the position  $r_i$  and the orientation  $\hat{p}_i$  of the  $i$ th particle:

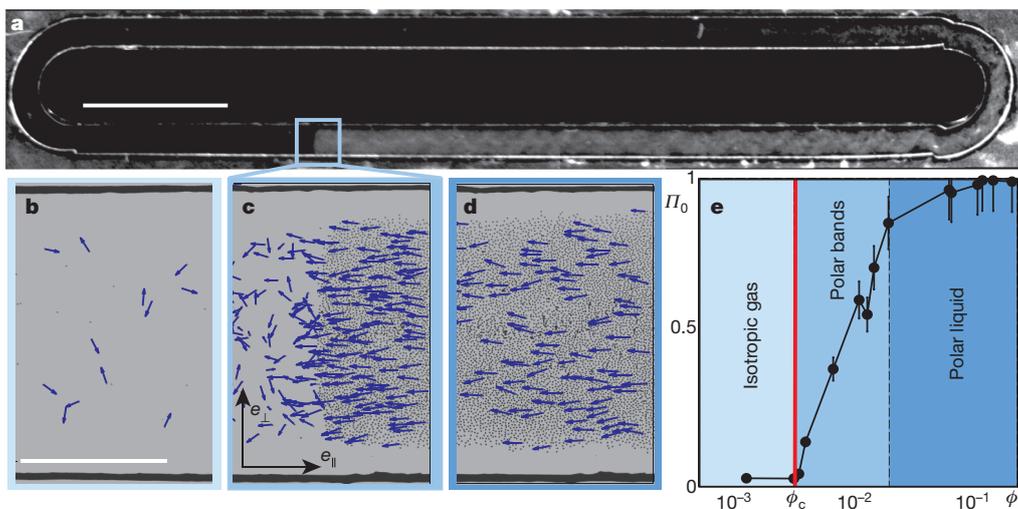
$$\dot{r}_i = v_0 \hat{p}_i$$

$$\dot{\theta}_i = \frac{1}{\tau} \sum_{i \neq j} \frac{\partial}{\partial \theta_i} H_{\text{eff}}(r_i - r_j, \hat{p}_i, \hat{p}_j)$$

Here  $\hat{p}_i$  makes an angle  $\theta_i$  with the  $x$  axis, and a dot denotes a time derivative. In dilute systems, the particle interactions do not affect their propulsion speed, yet the electric field and flow field compete to align the  $\hat{p}_i$  with them. This competition results in an effective potential,  $H_{\text{eff}}$ , for the  $\hat{p}_i$ . At leading order in  $a/r$

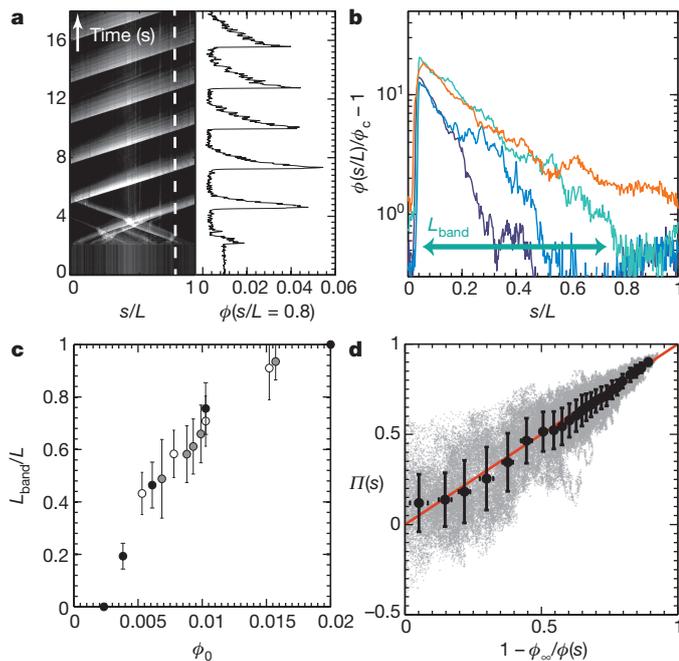
$$H_{\text{eff}}(r, p_i, p_j) = A(r) \hat{p}_i \cdot \hat{p}_j + B(r) \hat{p}_i \cdot \hat{r} + C(r) \hat{p}_i \cdot (2\hat{r}\hat{r} - I) \cdot \hat{p}_j$$

where  $A(r)$  is a positive function and thus promotes the alignment of the neighbouring rollers,  $I$  is the identity matrix,  $\hat{r}\hat{r}$  is the outer product of  $\hat{r}$  with itself, and a dot denotes tensor contraction. Importantly,  $A$  is dominated by a hydrodynamic interaction, which arises from a hydrodynamic-rotlet singularity screened over distances of the order of the chamber height<sup>23</sup>. The function  $B(r)$  is also short ranged and accounts



**Figure 2 | Transition to directed collective motion.** **a**, Dark-field pictures of a roller population that spontaneously forms a macroscopic band propagating along the racetrack.  $E_0/E_Q = 1.39$ ,  $\phi_0 = 10^{-2}$ . Scale bar, 5 mm. **b–d** Close-up views. The arrows correspond to the roller displacement between two subsequent video frames (180 frames  $\text{s}^{-1}$ ). **b**, Isotropic gas.  $\phi_0 = 6 \times 10^{-4}$ .

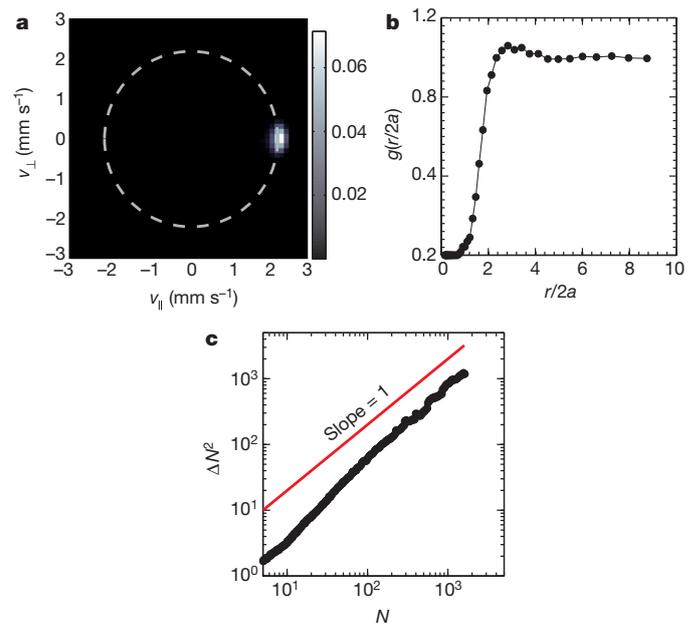
**c**, Propagating band.  $\phi_0 = 10^{-2}$ . **d**, Homogeneous polar liquid.  $\phi_0 = 1.8 \times 10^{-1}$ . Scale bar, 500  $\mu\text{m}$ . **e**, Modulus of the average polarization,  $\Pi_0$ , plotted versus the area fraction,  $\phi_0$ . Collective motion occurs as  $\phi_0$  exceeds  $\phi_c = 3 \times 10^{-3}$ .  $\phi_c$  is independent of  $E_0$ . Error bars, 1 s.d.  $e_{\parallel}$  (or  $e_{\perp}$ ) is the unit vector oriented along the tangent (or the normal) of the racetrack confinement.



**Figure 3 | Propagating-band state.** **a**, Spatiotemporal variations of the area fraction measured along the curvilinear coordinate,  $s$ , and temporal variations of the area fraction at  $s = 0.8L$  (white dashed line), where  $L$  is the overall length of the racetrack. **b**, Band shape plotted versus the rescaled curvilinear coordinate,  $s/L$ , for  $\phi_0 = 5.3 \times 10^{-3}$  (dark blue),  $7.8 \times 10^{-3}$  (blue),  $1.0 \times 10^{-2}$  (cyan) and  $1.5 \times 10^{-2}$  (orange). **c**, The rescaled band length,  $L_{\text{band}}/L$ , increases with  $\phi_0$  and is independent of  $L$  (white dots,  $L = 28$  mm; grey dots,  $L = 50$  mm; black dots,  $L = 73$  mm). Error bars show the estimated error associated with the measurement of  $L_{\text{band}}$ . **d**,  $\Pi(s)$  plotted versus  $1 - \phi_{\infty}/\phi(s)$ . The black dots correspond to averages over 5,000 local measurements (grey dots). The red curve is the theoretical prediction. Error bars, 1 s.d.

for a dipolar repulsion. Conversely,  $C(r)$  is long ranged and decays algebraically as  $r^{-2}$  owing to another hydrodynamic singularity induced by the roller motion in confinement. This singularity is referred to as a source doublet<sup>24</sup>. Neither  $B$  nor  $C$  yields any net alignment interaction. If these two terms were neglected, our model built from the actual microscopic interactions would amount to the ‘flying  $xy$  model’ introduced on phenomenological grounds in ref. 25. We emphasize that  $H_{\text{eff}}$  is independent of  $v_0$  and  $E_0$ , and that it is not specific to the Quincke mechanism. Its form could have been deduced from generic arguments based on global rotational invariance.

We then use a conventional Boltzmann-like kinetic-theory framework to derive the large-scale equation of motion for the density, and the polarization fields<sup>22,25</sup>. In the present case, this approximation was fully supported by the weak positional correlations in all the three phases, as exemplified in Fig. 4b. The resulting hydrodynamic equations are shown in Supplementary Methods. At the onset of collective motion, the magnitudes of the terms arising from the long-range hydrodynamic interactions are negligible. We are therefore left with equations for  $\phi$  and  $\Pi$  akin to those in the model of refs 2, 3. However, we explicitly provide the functional form of the transport coefficients introduced on phenomenological grounds in ref. 2. Accordingly, we find that the competition between the polar ordering (induced by the short-range hydrodynamic interactions) and rotational diffusion yields a mean-field phase transition between an isotropic state and a macroscopically ordered state (Supplementary Methods). The phase transition occurs above a critical fraction,  $\phi_c$ , that does not depend on the particle velocity (that is, on  $E_0$ ), in agreement with our experiments: collective motion chiefly stems from hydrodynamic interactions between the electrically powered rollers. However, at the onset of collective motion (that is, for  $\phi_0 > \phi_c$ ), the homogeneous polar state is linearly unstable to spatial



**Figure 4 | Polar-liquid state.** **a**, Probability distribution of the velocity vector ( $v_{\parallel}, v_{\perp}$ ) in the polar-liquid state. The probability distribution involves more than  $3.2 \times 10^7$  measurements of instantaneous speed. **b**, Pair correlation function,  $g$ , of the particle position in the polar-liquid state. **c**, The variance of the number of colloids,  $\Delta N^2$ , scales linearly with the average number of colloids,  $N$ , counted inside boxes of increasing size.  $E_0/E_c = 1.39$ ,  $\phi_0 = 9.5 \times 10^{-2}$ .

heterogeneities. Moreover, for  $\phi_0 > \phi_c$ , the compression modes are unstable eigenmodes of the isotropic state, in agreement with the emergence of density bands observed in the experiments, all starting from a homogeneous state and an isotropic velocity distribution.

We also rigorously establish a kinetic theory for the strongly polarized state reached for  $\phi_0 > \phi_c$  (Supplementary Methods). In this regime, the short-range electrostatic repulsion matters, causing the density fluctuations to relax and stabilizing the polar-liquid state. In addition, the long-range hydrodynamic interactions further stabilize the system by damping the modes of  $\Pi$  with non-zero divergence, that is, the splay modes that couple orientation disturbances to density fluctuations<sup>24</sup>. As a result, the giant density fluctuations<sup>26</sup> are suppressed, in agreement with our unanticipated experimental findings (Fig. 4c and Supplementary Methods). We stress here that these long-range hydrodynamic interactions do not depend at all on the propulsion mechanism at the individual level. They solely arise from the confinement of the fluid in the  $z$  direction<sup>24</sup>. They are therefore not specific to the Quincke propulsion mechanism.

The only way to destroy the robust polar-liquid phase is to prevent it geometrically by eliminating the angular periodicity of the confinement in the curvilinear coordinate. In rectangular geometries with large enough aspect ratios, we observe that the bands never relax but rather bounce endlessly against the confining box (Supplementary Video 5). In confinement with an aspect ratio of order one, the band state is replaced by a single macroscopic vortex (Supplementary Video 6).

We have engineered large-scale populations of self-propelled particles from which collective macroscopic polar motion emerges from hydrodynamic interactions at exceptionally small densities. We believe that control over their interactions, and the ease with which they can be confined in custom geometries, will extend the present framework of active matter to include collective motion in more complex environments relevant to biological, robotic and social systems.

## METHODS SUMMARY

We use commercial poly(methyl methacrylate) colloids (Thermo Scientific G0500; 2.4- $\mu\text{m}$  radius), dispersed in a  $0.15 \text{ mol l}^{-1}$  AOT/hexadecane solution. The suspension is injected into a wide microfluidic chamber made of double-sided Scotch

Tape. The tape is sandwiched between two ITO-coated glass slides (Solems, ITOSOL30; 80-nm thick). To achieve electric confinement, an additional layer of Scotch Tape including a hole with the desired geometry is added to the upper ITO-coated slide. The holes are made with a precision plotting cutter (Graphtec Robo CE 5000). The gap between the two ITO electrodes,  $H = 220 \mu\text{m}$ , is constant over the entire chamber. The electric field is applied by means of a voltage amplifier (Trek 606E-6). The colloids are observed with a Nikon AMZ1500 stereomicroscope ( $\times 1$  magnification) equipped with a dark-field illuminator, and with a Zeiss Axiovert microscope ( $\times 10$  objective) for local measurements. In both case, high-speed videos are taken with CMOS camera (Basler Ace) at frame rates between 70 and 900 frames per second. The particles are detected to a precision of one pixel by locating the intensity maxima on the experimental pictures. The particle trajectories are reconstructed using a conventional tracking code<sup>27</sup>.

Received 17 May; accepted 12 September 2013.

- Vicsek, T., Czirók, A., Ben-Jacob, E., Cohen, I. & Shochet, O. Novel type of phase transition in a system of self-driven particles. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1226–1229 (1995).
- Toner, J., Tu, Y. & Ramaswamy, S. Hydrodynamics and phases of flocks. *Ann. Phys.* **318**, 170–244 (2005).
- Marchetti, M. C. *et al.* Hydrodynamics of soft active matter. *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1143–1189 (2013).
- Vicsek, T. & Zafeiris, A. Collective motion. *Phys. Rep.* **517**, 71–140 (2012).
- Grégoire, G. & Chaté, H. Onset of collective and cohesive motion. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 025702 (2004).
- Buhl, J. *et al.* From disorder to order in marching locusts. *Science* **312**, 1402–1406 (2006).
- Schaller, V., Weber, C., Semmrich, C., Frey, E. & Bausch, A. R. Polar patterns of driven filaments. *Nature* **467**, 73–77 (2010).
- Sumino, Y. *et al.* Large-scale vortex lattice emerging from collectively moving microtubules. *Nature* **483**, 448–452 (2012).
- Wioland, H., Woodhouse, F. G., Dunkel, J., Kessler, J. O. & Goldstein, R. E. Confinement stabilizes a bacterial suspension into a spiral vortex. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 268102 (2013).
- Zhang, H. P., Be'er, A., Florin, E.-L. & Swinney, H. L. Collective motion and density fluctuations in bacterial colonies. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **107**, 13626–13630 (2010).
- Theurkauff, I., Cottin-Bizonne, C., Palacci, J., Ybert, C. & Bocquet, L. Dynamic clustering in active colloidal suspensions with chemical signaling. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 268303 (2012).
- Palacci, J., Sacanna, S., Steinberg, A. P., Pine, D. J. & Chaikin, P. M. Living crystals of light-activated colloidal surfers. *Science* **339**, 936–940 (2013).
- Sanchez, T., Chen, D. T. N., DeCamp, S., Heymann, M. & Dogic, Z. Spontaneous motion in hierarchically assembled active matter. *Nature* **491**, 431–434 (2012).
- Deseigne, J., Dauchot, O. & Chaté, H. Collective motion of vibrated polar disks. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 098001 (2010).
- Kudrolli, A., Lumay, G., Volfson, D. & Tsimring, L. Swarming and swirling in self-propelled polar granular rods. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 058001 (2008).
- Dombrowski, C., Cisneros, L., Chatkaew, S., Goldstein, R. E. & Kessler, J. O. Self-concentration and large-scale coherence in bacterial dynamics. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 098103 (2004).
- Aditi Simha, R. & Ramaswamy, S. Hydrodynamic fluctuations and instabilities in ordered suspensions of self-propelled particles. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 058101 (2002).
- Quincke, G. Ueber Rotationen im constanten electrischen Felde. *Ann. Phys. Chem.* **59**, 417–486 (1896).
- Melcher, J. R. & Taylor, G. I. Electrohydrodynamics: a review of the role of interfacial shear stresses. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **1**, 111–146 (1969).
- O'Loan, O. J. & Evans, M. R. Alternating steady state in one-dimensional flocking. *J. Phys. A* **32**, L99 (1999).
- Chaté, H., Ginelli, F., Grégoire, G. & Raynaud, F. Collective motion of self-propelled particles interacting without cohesion. *Phys. Rev. E* **77**, 046113 (2008).
- Bertin, E., Droz, M. & Grégoire, G. Hydrodynamic equations for self-propelled particles: microscopic derivation and stability analysis. *J. Phys. A* **42**, 445001 (2009).
- Hackborn, W. W. Asymmetric Stokes flow between parallel planes due to a rotlet. *J. Fluid Mech.* **218**, 531–546 (1990).
- Brotto, T., Caussin, J.-B., Lauga, E. & Bartolo, D. Hydrodynamics of confined active fluids. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 038101 (2013).
- Farrell, F. D. C., Marchetti, M. C., Marenduzzo, D. & Tailleur, J. Pattern formation in self-propelled particles with density-dependent motility. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 248101 (2012).
- Schaller, V. & Bausch, A. R. Topological defects and density fluctuations in collectively moving systems. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **110**, 4488–4493 (2013).
- Crocker, J. C. & Grier, G. Methods of digital video microscopy for colloidal studies. *J. Colloid Interface Sci.* **179**, 298–310 (1996).

Supplementary Information is available in the online version of the paper.

**Acknowledgements** We acknowledge support from the Paris Emergence programme (D.B.), C'Nano IdF (D.B.) and the Institut Universitaire de France (D.B.). We thank L. S. Tuckerman and H. Chaté for their useful comments and suggestions.

**Author Contributions** A.B. and N.D. performed the experiments. A.B., N.D., O.D. and D.B. analysed the experimental results. D.B. conceived the project and designed the experiments. J.-B.C. and D.B. worked out the theory and wrote the Supplementary Methods. J.-B.C., O.D. and D.B. wrote the paper.

**Author Information** Reprints and permissions information is available at [www.nature.com/reprints](http://www.nature.com/reprints). The authors declare no competing financial interests. Readers are welcome to comment on the online version of the paper. Correspondence and requests for materials should be addressed to D.B. ([denis.bartolo@ens-lyon.fr](mailto:denis.bartolo@ens-lyon.fr)).



## Dynamique de rouleurs colloïdaux en milieu hétérogène

Le système expérimental présenté dans les chapitres précédents offre des opportunités uniques pour étudier le mouvement collectif de larges assemblées de particules actives en interaction. Contrairement à la plupart des systèmes naturels et/ou expérimentaux où les interactions entre les individus ne sont pas connues exactement, les couplages hydrodynamiques et électrostatiques entre les rouleurs de Quincke sont bien identifiés. Les techniques de microfluidique et de microscopie utilisées permettent de réaliser des expériences quantitatives dans des géométries variées. Dans le chapitre précédent, j'ai présenté nos résultats sur la transition vers le mouvement collectif d'assemblées de rouleurs de Quincke dans des chambres microfluidiques "homogènes". Dans ces chambres, les rouleurs se déplacent sur une surface plane et dans un liquide globalement homogène. La diffusion rotationnelle des rouleurs provient principalement des fluctuations de charge à leurs surfaces (régime dilué) ou des interactions avec les autres rouleurs (régime concentré). Puisque l'environnement des particules était homogène, nous avons pu nous concentrer sur les interactions entre les particules et identifier l'origine de l'ordre polaire. Dans les systèmes naturels, le mouvement des individus s'effectue le plus souvent au sein de milieux hétérogènes. Par exemple, les microtubules propulsés par les moteurs moléculaires dans les cellules se déplacent au milieu d'organites et de vésicules cytoplasmiques. Malgré la forte récurrence de ce type de situations, il existe très peu de travaux théoriques et/ou expérimentaux qui étudient l'influence du désordre sur le mouvement collectif de particules actives en interaction. Dans ce chapitre, je présente le travail expérimental que j'ai effectué sur la dynamique de rouleurs colloïdaux dans des milieux désordonnés modèles. Je commence par décrire brièvement

la manière dont on introduit des obstacles dans nos chambres microfluidiques. Ensuite, je caractérise expérimentalement l'interaction particule/obstacle. Dans un second temps, je m'intéresse à l'influence du désordre spatial sur la dynamique collective des rouleurs. Pour cela, je me place à une fraction surfacique en rouleurs où en l'absence d'obstacle une partie importante des particules forme une bande propagative. J'étudie alors comment se comporte le système au fur et à mesure que l'on augmente la fraction surfacique en obstacles. On verra qu'au dessus d'une certaine fraction surfacique en obstacles, le mouvement collectif des rouleurs est inhibé. Cette transition vers le désordre est caractérisée finement en étudiant le système aux niveaux macroscopique et microscopique. De cette manière, on identifie les mécanismes responsables de la disparition de la dynamique collective en présence d'un fort désordre. Le travail présenté dans ce chapitre a été réalisé lors de la dernière année de ma thèse et n'a pas encore été publié. Un article est cependant en cours de rédaction.

## 8.1 Design expérimental d'un milieu désordonné modèle

Les études présentées dans le chapitre précédent ont été réalisées dans des dispositifs microfluidiques à base de ruban adhésif double-face (voir section 6.3 du chapitre 6). Cette méthode de fabrication permet de réaliser très rapidement les dispositifs et de changer facilement la géométrie des chambres microfluidiques en cas de besoin. Elle est cependant limitée par la résolution de la découpeuse qui ne permet pas de découper précisément des motifs de taille inférieure à la centaine de microns. Pour étudier l'effet du désordre sur la dynamique des rouleurs, notre idée est de commencer par réaliser des expériences "simples" où les particules se déplacent dans des chambres microfluidiques remplies d'obstacles fixes de taille comparable à la taille des particules (pour rappel, nos rouleurs ont un diamètre de  $4.8 \mu\text{m}$ ). Ces obstacles ne peuvent pas être découpés dans le ruban adhésif double-face car ils sont bien trop petits. Pour réaliser des chambres microfluidiques remplies d'obstacles de petite taille, j'ai dû mettre au point le protocole de fabrication par lithographie optique présenté dans la section 6.4 du chapitre 6. L'idée est de remplacer l'une des deux couches de ruban adhésif, celle qui délimite les contours des chambres, par une couche de résine photosensible dans laquelle on vient "graver" par lithographie optique les chambres microfluidiques et les obstacles à l'intérieur de celles-ci. On conserve en revanche la seconde couche de ruban adhésif qui délimite le canal principal qui permet d'alimenter les chambres en colloïdes (voir Fig. 8.1 a.). Cette méthode de fabrication est moins versatile et plus onéreuse que celle à base uniquement de ruban adhésif double-face puisque l'impression des masques pour la lithographie nécessite de faire appel à une entreprise spécialisée dans l'impression haute résolution. Néanmoins, elle permet de réaliser de manière très reproductible des chambres microfluidiques avec des obstacles circulaires de diamètre de l'ordre de la dizaine de microns (voir Fig. 8.1 b.). Les obstacles sont des plots cylindriques

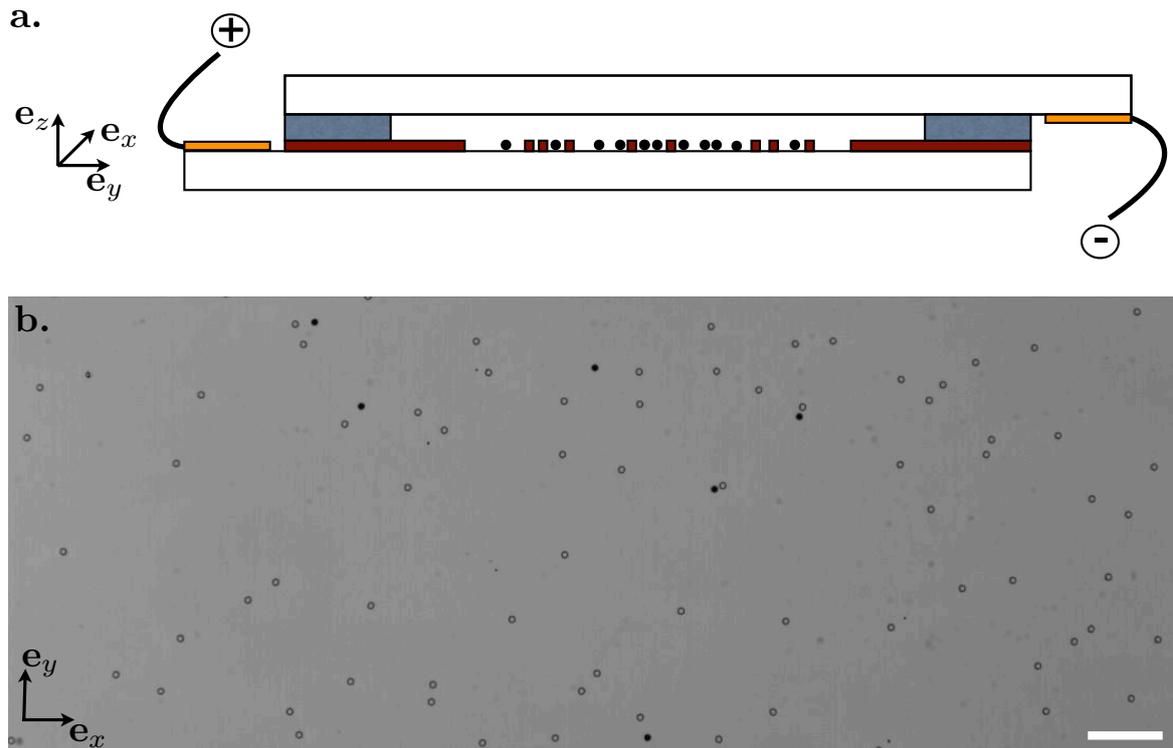


FIGURE 8.1: **a.** Schéma d'une vue en coupe d'un dispositif où la chambre microfluidique est délimitée par une couche de résine photolithographiée qui recouvre l'électrode du bas. Un espaceur en ruban adhésif double-face est collé sur l'électrode du haut pour pouvoir alimenter la chambre en colloïdes. Les obstacles correspondent aux petits plots cylindriques de résine collés sur l'électrode du bas. La hauteur de la couche de résine est de l'ordre de  $2 - 3 \mu\text{m}$ . La hauteur de l'espaceur en ruban adhésif vaut  $110 \mu\text{m}$ . **b.** Image au microscope d'une chambre microfluidique pourvue d'obstacles de rayon  $5 \mu\text{m}$ . Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

de résine photosensible collés sur l'électrode du bas sur laquelle se déplacent les rouleurs. Le diamètre de ces plots est fixé par la taille des motifs imprimés sur le masque tandis que leur hauteur dépend de l'étape de "spin coating" lors de la lithographie. Dans toutes les expériences présentées par la suite, la hauteur des obstacles est fixe et se situe entre  $2$  et  $3 \mu\text{m}$ .

## 8.2 Caractérisation de l'interaction particule/obstacle

Dans cette section, je commence par fournir la caractérisation expérimentale de l'interaction particule/obstacle, puis je discute brièvement du mécanisme physique à l'origine de cette interaction. Les paramètres que l'on a fait varier pour cette caractérisation de l'interaction sont l'amplitude du champ électrique qui pilote l'électro-rotation de Quincke et le rayon des obstacles. Pour cette caractérisation, j'ai réalisé des chambres contenant des

obstacles isolés, c'est à dire séparés entre eux d'une distance d'au moins  $500 \mu\text{m}$ . J'injecte une suspension très diluée en colloïdes dans ces chambres ( $\Phi_0 \sim 7 \times 10^{-4}$ ). Ainsi les interactions entre les rouleurs sont rares et ce que l'on observe est principalement l'interaction entre un obstacle et un rouleur. Quels que soient le diamètre des obstacles ou l'amplitude du champ électrique (pourvu que  $1.1 \leq (E_0/E_Q) \leq 2.5$ ), on observe que l'interaction entre un obstacle et un rouleur est répulsive (vidéo disponible à l'adresse : <http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/obs10um20um.mov>). Les trajectoires des rouleurs sont déviées lorsqu'elles s'approchent d'un l'obstacle, voir Fig. 8.2 a. Lors de l'interaction, la vitesse des rouleurs reste constante sauf très près de l'obstacle où elle augmente légèrement, voir Fig. 8.2 b.

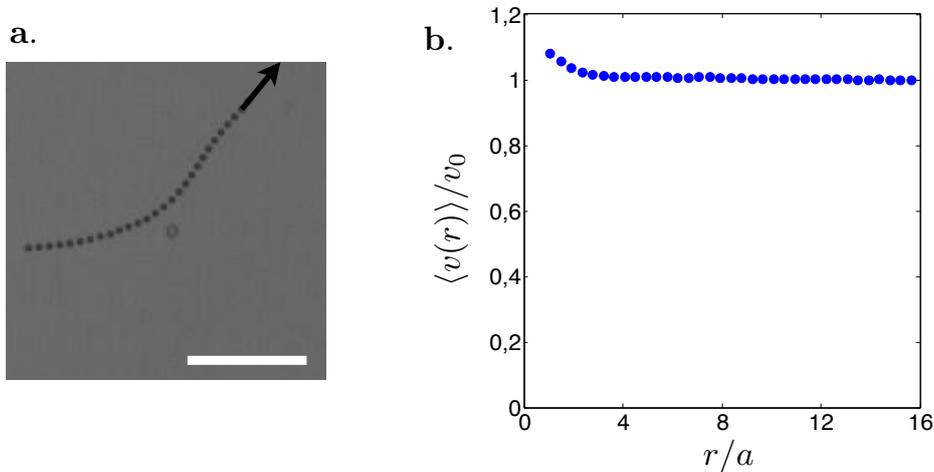


FIGURE 8.2: **a.** Interaction d'un rouleur avec un obstacle de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$ . Superposition de 30 images successives espacées de 10 ms. La flèche noire indique la direction de la vitesse instantanée du rouleur. Barre d'échelle :  $50 \mu\text{m}$ . **b.** Vitesse moyenne des rouleurs à la distance  $r$  du centre de l'obstacle normalisée par la vitesse moyenne  $v_0$  dans la fenêtre d'observation. La distance  $r$  au centre de l'obstacle est normalisée par le rayon  $a$  de l'obstacle. Pour cette courbe,  $a = 5 \mu\text{m}$ ,  $E_0/E_Q = 1.38$ ,  $v_0 = 484 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

On déduit des figures Fig. 8.2 a. et b. que l'effet de l'obstacle sur les rouleurs est celui d'un couple qui modifie l'orientation des particules, et non celui d'une force qui diminuerait également l'amplitude de la vitesse à l'approche de l'obstacle. Pour quantifier l'action répulsive exercée par les obstacles, on regarde dans un premier temps comment ils perturbent la distribution moyenne en particules autour d'eux. Pour cela, on mesure la moyenne temporelle de la fraction surfacique en rouleurs en fonction de la distance  $r$  au centre d'un obstacle. La figure Fig. 8.3 a. montre la fraction surfacique en particules autour d'un obstacle de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$  pour différents champs électriques. On observe que quelle que soit la valeur du champ appliqué, la fraction surfacique en particules diminue lorsqu'on s'approche de l'obstacle. Cette diminution est d'autant plus rapide qu'on se rapproche de l'obstacle.

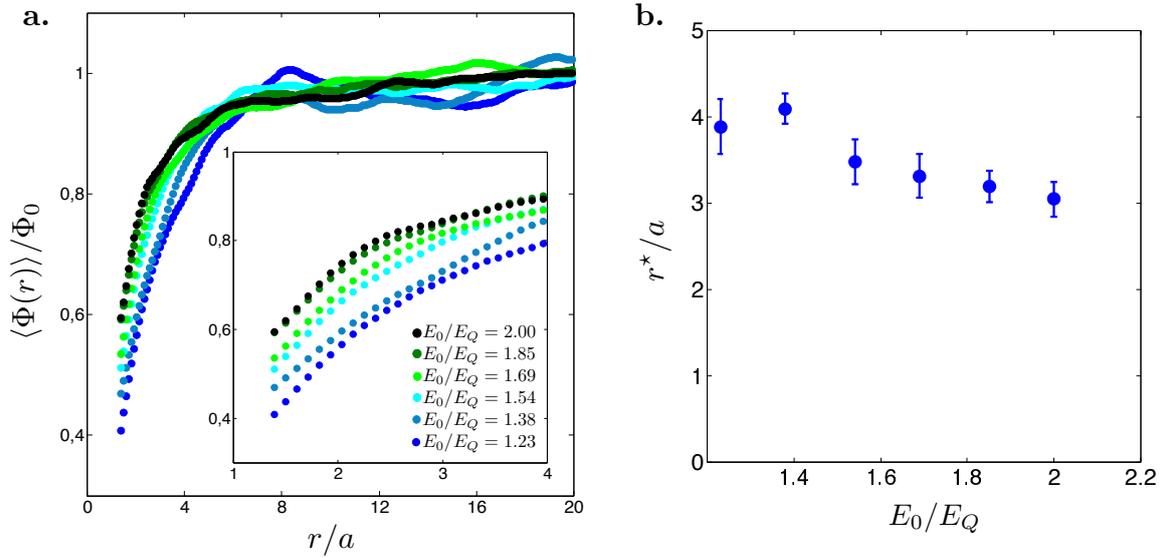


FIGURE 8.3: **a.** Moyenne temporelle de la fraction surfacique en rouleurs à la distance  $r$  du centre de l'obstacle normalisée par la fraction surfacique moyenne  $\Phi_0$  dans la fenêtre d'observation. La distance  $r$  au centre de l'obstacle est normalisée par le rayon  $a = 5 \mu\text{m}$  de l'obstacle. Les mesures sont effectuées pour 6 champs électriques différents. En insert, zoom sur les courbes à faible distance du centre de l'obstacle. **b.** "Portée" de l'interaction,  $r^*$ , normalisée par le rayon  $a$  de l'obstacle, en fonction du champ électrique appliqué.  $a = 5 \mu\text{m}$ .

Pour des distances supérieures à environ  $40 \mu\text{m}$  du centre de l'obstacle, on voit que la distribution en particules n'est pratiquement plus perturbée par la présence de l'obstacle. Près de l'obstacle ( $r/a < 8$ ), la fraction surfacique en particules dépend du champ électrique appliqué. Plus le champ est élevé et plus les particules arrivent à se rapprocher de l'obstacle. Il semble donc que le couple exercé par l'obstacle sur les particules décroît lorsqu'on augmente le champ électrique. Pour quantifier cette observation, on note qu'à faible distance de l'obstacle ( $r \lesssim 15 \mu\text{m}$ ), la fraction surfacique en particules augmente linéairement avec  $r$ . On définit alors une "portée" de l'interaction,  $r^*$ , comme la distance à laquelle la pente à l'origine intersecte la droite horizontale correspondant à  $\langle \Phi(r) \rangle = \Phi_0$ . Cette définition est arbitraire mais elle donne une bonne idée de la distance sur laquelle l'obstacle exerce une influence notable. La figure Fig. 8.3 **b** montre la mesure de  $r^*$  en fonction du champ électrique appliqué. On constate bien que la portée de l'interaction diminue légèrement lorsqu'on augmente le champ électrique. Pour caractériser plus finement l'interaction et son effet sur les trajectoires des rouleurs, on mesure les angles de déviation  $\alpha$  des trajectoires des rouleurs en fonction des paramètres d'impact  $b$  de ces trajectoires, voir Fig. 8.4. Les mesures sont effectuées à  $30 \mu\text{m}$  du centre de l'obstacle, soit une distance légèrement supérieure à la "portée" de l'interaction mais très inférieure à la longueur de persistance

des trajectoires des rouleurs en l'absence d'obstacle. La forme globale de ces courbes dépend peu de l'amplitude du champ électrique appliqué, voir Fig. 8.4 b. Dans tous les cas, l'angle de déviation est d'autant plus grand que la particule arrive de manière frontale sur l'obstacle. Remarquons cependant que même lorsque la particule arrive avec un paramètre d'impact nul, elle ne fait pas demi-tour mais sa trajectoire est déviée d'un angle de l'ordre de  $60^\circ$ . De ces courbes, on retiendra qu'un obstacle de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$  dévie les trajectoires des rouleurs qui l'approchent mais toujours avec des angles relativement faibles inférieurs à environ  $60^\circ$ .

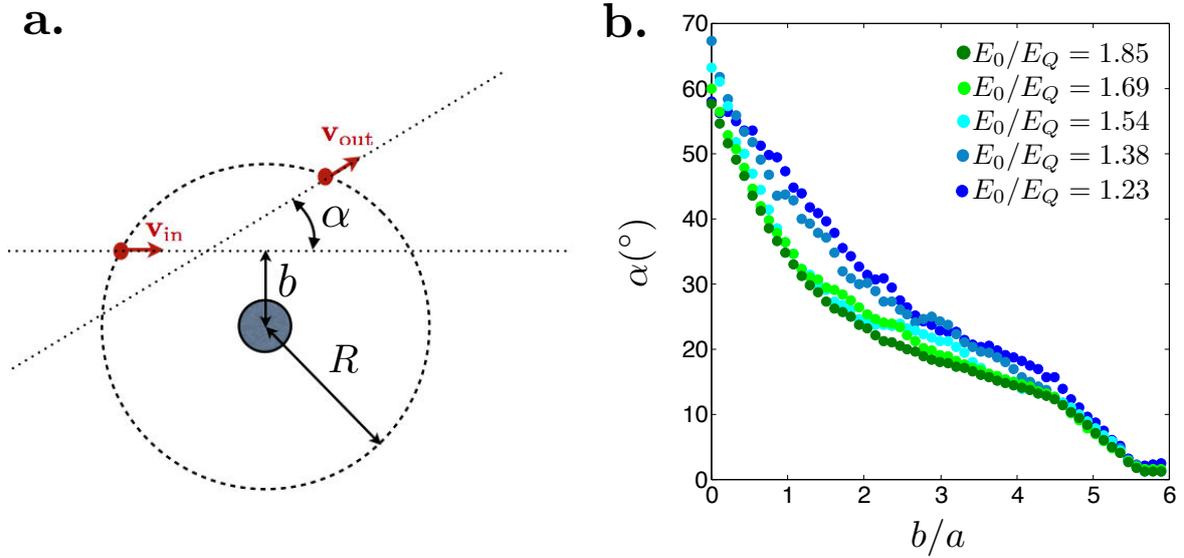


FIGURE 8.4: Diffusion des rouleurs sur un obstacle **a**. Schéma du processus de diffusion d'un raleur sur un obstacle. Le raleur entre dans le cercle de rayon  $R = 30 \mu\text{m}$  centré sur l'obstacle avec une vitesse  $\mathbf{v}_{\text{in}}$  et ressort du cercle avec la vitesse (de même amplitude)  $\mathbf{v}_{\text{out}}$ .  $b$  est le paramètre d'impact de la trajectoire et  $\alpha$  l'angle de déviation. **b**. Angle de déviation,  $\alpha$ , en fonction du paramètre d'impact,  $b$ , normalisé par le rayon  $a = 5 \mu\text{m}$  de l'obstacle, pour 5 champs électriques différents. Chaque point de ces courbes correspond à une moyenne sur plusieurs dizaines de trajectoires.

Au cours de mes expériences, j'ai également étudié l'impact du diamètre des obstacles sur la portée de l'interaction. La figure Fig. 8.5 a. montre les fractions surfaciques moyennes en particules autour d'obstacles de 4 tailles différentes et pour un même champ électrique. En utilisant la définition précédente pour la portée de l'interaction, on constate que celle-ci augmente linéairement avec la taille de l'obstacle, voir figure Fig. 8.5 b.

Maintenant que nous avons une caractérisation expérimentale de l'interaction raleur/obstacle, nous pouvons dire quelques mots sur l'origine physique de cette interaction. Nous pensons qu'elle provient des flux électrohydrodynamiques qui résultent de la discontinuité de cou-

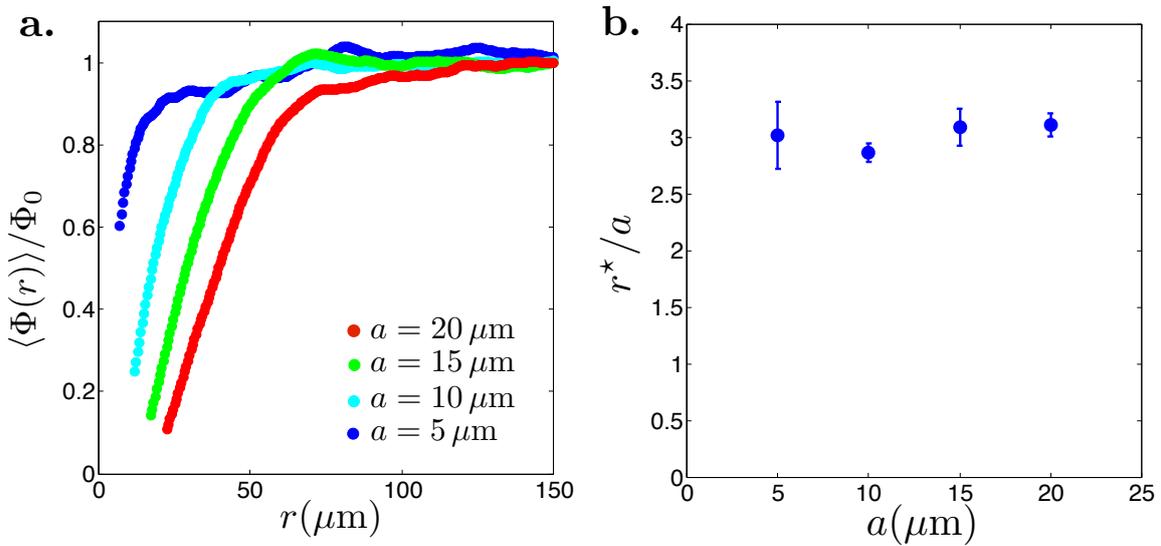


FIGURE 8.5: Influence du rayon de l'obstacle sur la portée de l'interaction. **a.** Moyenne temporelle de la fraction surfacique en rouleurs à la distance  $r$  du centre de l'obstacle normalisée par la fraction surfacique moyenne  $\Phi_0$  dans la fenêtre d'observation. Les 4 courbes correspondent à 4 obstacles de rayons  $a$  différents. **b.** Portée de l'interaction,  $r^*$ , normalisée par le rayon de l'obstacle en fonction du rayon de l'obstacle.

rant au niveau des bords de l'obstacle [69, 80]. Il s'agit en fait du même mécanisme que celui qui assure le confinement des rouleurs à l'intérieur des chambres et qui a été décrit dans la section 7.1 du chapitre 7. Nous n'avons pas cherché à comprendre en détail cette interaction, c'est à dire à trouver une description analytique qui corresponde à nos résultats expérimentaux. Cela demanderait de connaître en détail la physico-chimie du système et de prendre en compte des paramètres géométriques qui rendent les calculs très complexes. Pour la suite, l'origine de l'interaction particule/obstacle importe peu et ce qui est important ce sont les propriétés qui ont été décrites quantitativement ci-dessus.

## 8.3 Influence du désordre sur la dynamique collective des rouleurs

### 8.3.1 Présentation de l'expérience

Dans la section précédente, nous avons vu comment introduire du désordre spatial dans nos chambres microfluidiques en y plaçant des obstacles fixes. L'interaction entre un rouleur et un obstacle a été caractérisée. Nous souhaitons maintenant étudier l'impact du désordre spatial sur la dynamique collective des rouleurs. Bien sûr, de très nombreuses situations expérimentales sont envisageables (obstacles monodisperses ou polydisperses, différentes fractions surfaciques en particules, dispositions des obstacles, ...). Toutefois, dans un premier temps, il est préférable de concevoir un système relativement simple qui nous permette de comprendre les mécanismes en jeu dans ce que l'on observe. Dans cette optique, nous avons décidé de réaliser nos expériences avec des obstacles monodisperses de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$ . Ces obstacles sont placés de façon aléatoire au sein de chambres rectangulaires de longueur  $L = 15 \text{ mm}$  et de largeur  $W = 1 \text{ mm}$ . Le paramètre que l'on fait varier d'une expérience à l'autre est le nombre d'obstacles dans la piste, soit la fraction surfacique en obstacles  $\Phi_{\text{obs}}$ . La fraction surfacique en rouleurs, elle, est la même pour toutes les expériences et les rouleurs sont mis en mouvement par un champ électrique constant  $E_0/E_Q = 1.38$ . La fraction surfacique en rouleurs,  $\Phi_0 \sim 10^{-2}$ , est choisie pour qu'en l'absence d'obstacles dans la piste ( $\Phi_{\text{obs}} = 0$ ), une part importante des rouleurs forme une bande propagative qui "rebondit" sur les parois latérales de la piste, voir Fig. 8.6 et vidéo disponible à l'adresse suivante : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c11p1\\_2.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c11p1_2.mov).

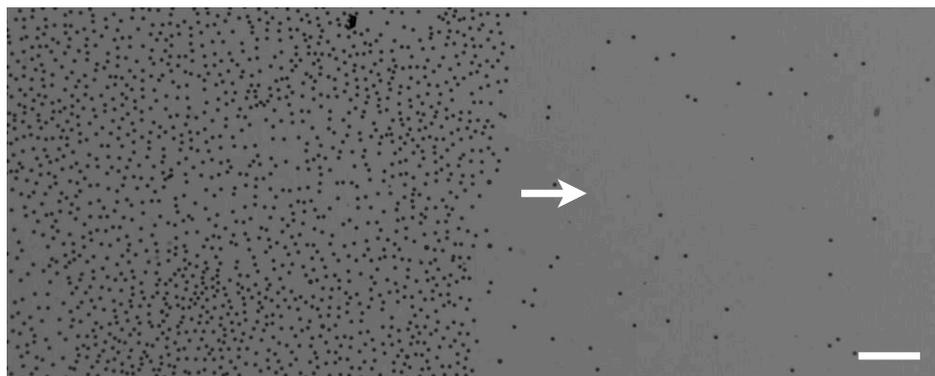


FIGURE 8.6: Image d'une bande se propageant dans une chambre rectangulaire sans obstacles de longueur  $L = 15 \text{ mm}$  et de largeur  $W = 1 \text{ mm}$ . La flèche indique le sens de propagation de la bande.  $\Phi_0 \sim 10^{-2}$ .  $E_0/E_Q = 1.38$ . L'image est prise au milieu de la piste et la taille de la fenêtre d'observation est  $1530 \mu\text{m} \times 612 \mu\text{m}$ . Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

La longueur de cette bande est de l'ordre de  $L/2$  et son profil (en densité ou en polarisation) au milieu de la piste (loin des rebonds) est stationnaire. La série d'expériences dont les résultats sont présentés dans la suite consiste à regarder comment se comportent les rouleurs dans des pistes où la fraction surfacique en obstacles est de plus en plus grande. Notamment, on cherche à savoir si l'état collectif bande survit au désordre spatial induit par les obstacles. 19 fractions surfaciques en obstacles allant de  $\Phi_{\text{obs}} = 0$  à  $\Phi_{\text{obs}} = 7.5 \times 10^{-2}$  sont considérées. Pour chaque fraction surfacique en obstacles, deux pistes avec deux réalisations différentes du désordre (deux tirages aléatoires de la position des obstacles) sont fabriquées. Les observations se font au microscope au milieu de la piste dans une fenêtre de taille  $1530 \mu\text{m} \times 612 \mu\text{m}$  (voir figure Fig. 8.6). Dans la suite, on utilisera comme paramètre la distance typique inter-obstacles,  $d_{\text{obs}} = \sqrt{\pi a^2 / \Phi_{\text{obs}}}$ , plutôt que la fraction surfacique en obstacles  $\Phi_{\text{obs}}$ .

### 8.3.2 Description qualitative de la phénoménologie observée

Décrivons tout d'abord de manière qualitative ce que l'on observe dans nos dispositifs. En l'absence d'obstacles,  $d_{\text{obs}} \rightarrow \infty$ , on a déjà vu qu'une fraction importante des rouleurs forme une bande propagative qui "rebondit" sur les parois latérales de la piste. Cet état bande a déjà été étudié au chapitre précédent dans des chambres en forme de piste d'athlétisme (cf. section 7.2 du chapitre 7). La bande a un profil en densité ou en polarisation asymétrique, avec un front net puis une décroissance exponentielle. Elle se propage au sein d'un fond de type gaz où la fraction surfacique en particules est faible. Pour des fractions surfaciques en obstacles non nulles, on distingue trois régimes suivant la distance typique inter-obstacles :

- Pour  $d_{\text{obs}} \gtrsim 120 \mu\text{m}$ , on constate peu de changement. Une bande se propage toujours dans la piste, voir Fig. 8.7 a. Sa longueur ne semble pas changer significativement. Les rouleurs qui forment la bande ne sont affectés que localement par les obstacles peu nombreux et ils conservent un mouvement dirigé.
- Pour  $50 \mu\text{m} \lesssim d_{\text{obs}} \lesssim 120 \mu\text{m}$ , on observe toujours une bande qui se propage et rebondit sur les parois latérales. Toutefois, sa longueur diminue au fur et à mesure que la fraction surfacique en obstacles augmente. La fraction surfacique en particules au niveau du front diminue elle aussi, voir Fig. 8.7 b. Le nombre de particules dans le fond de type gaz, lui, augmente de manière marquée.
- Pour  $d_{\text{obs}} \lesssim 50 \mu\text{m}$ , on n'observe plus de bande dans la piste, et ce malgré la haute fraction surfacique en particules, voir Fig. 8.7 c. La diffusion par les obstacles est trop fréquente pour permettre à des groupes cohérents de particules de se former de manière durable. Aux échelles de longueur supérieures à la distance typique inter-obstacles, les rouleurs semblent avoir une dynamique individuelle de type marche aléatoire persistante.

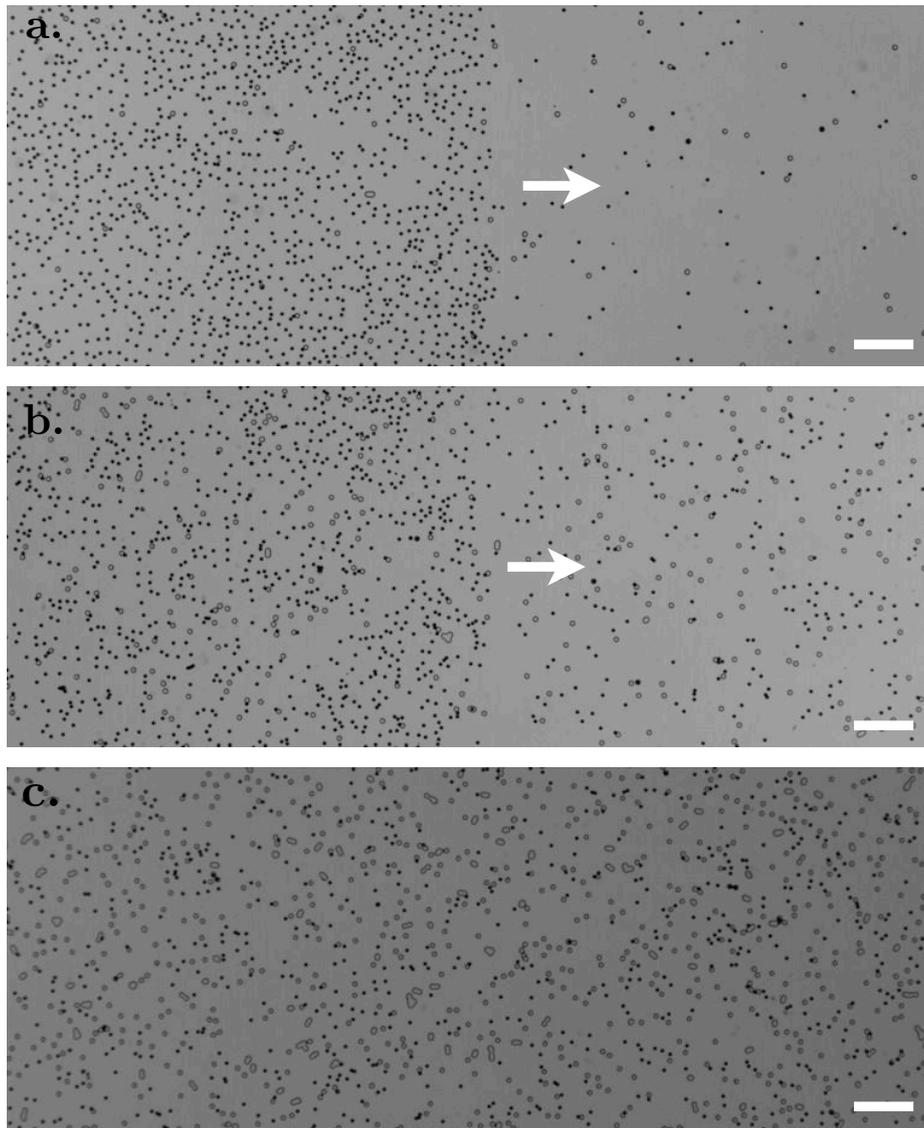


FIGURE 8.7: Aperçu de la dynamique des rouleurs en présence d'obstacles.  $\Phi_0 \sim 10^{-2}$ .  $E_0/E_Q = 1.38$ . Barres d'échelles :  $100 \mu\text{m}$ . **a.**  $d_{\text{obs}} = 127 \mu\text{m}$ . Une bande occupant toute la largeur de la piste se propage. Vidéo disponible à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c4p1\\_1.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c4p1_1.mov). **b.**  $d_{\text{obs}} = 57 \mu\text{m}$ . Une bande se propage toujours dans la piste mais sa longueur est plus faible qu'en l'absence d'obstacles. La fraction surfacique en particules au front de la bande est également diminuée. Vidéo disponible à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c7p1\\_1.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c7p1_1.mov). **c.**  $d_{\text{obs}} = 35 \mu\text{m}$ . Il n'y a plus de mouvement collectif aux échelles de longueurs supérieures à quelques  $d_{\text{obs}}$ . Vidéo disponible à l'adresse : [http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c10p1\\_2.mov](http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/c10p1_2.mov).

### 8.3.3 Etude quantitative de l'influence du désordre

#### 8.3.3.1 Paramètre d'ordre

Dans un premier temps, intéressons-nous à ce qui se passe à l'échelle macroscopique. Pour rendre compte de la transition entre une phase partiellement ordonnée où une fraction des rouleurs réalise un mouvement collectif dirigé à l'échelle du dispositif, et une phase où la dynamique est globalement isotrope, il faut définir un paramètre d'ordre qui tienne compte de la disparition d'un ordre orientationnel global. On pourrait utiliser, comme dans le chapitre précédent, le module des moyennes d'ensemble et temporelle de l'orientation des rouleurs  $\Pi = |\langle e^{i\theta} \rangle|$ . Cependant, ce choix n'est pas très judicieux ici. En effet, les pistes étant rectangulaires et les bandes effectuant des rebonds, un passage aller et un passage retour d'une bande annulent leurs contributions. On a plutôt besoin d'un paramètre qui soit invariant par rotation d'un angle de  $180^\circ$ . Un choix naturel de paramètre d'ordre est alors  $Q = |\langle e^{2i\theta} \rangle|$ . La figure Fig. 8.8 montre la mesure expérimental de ce paramètre d'ordre en fonction de la distance typique inter-obstacles. Ce graphique peut être interprété à l'aide des observations visuelles exposées dans le paragraphe précédent.

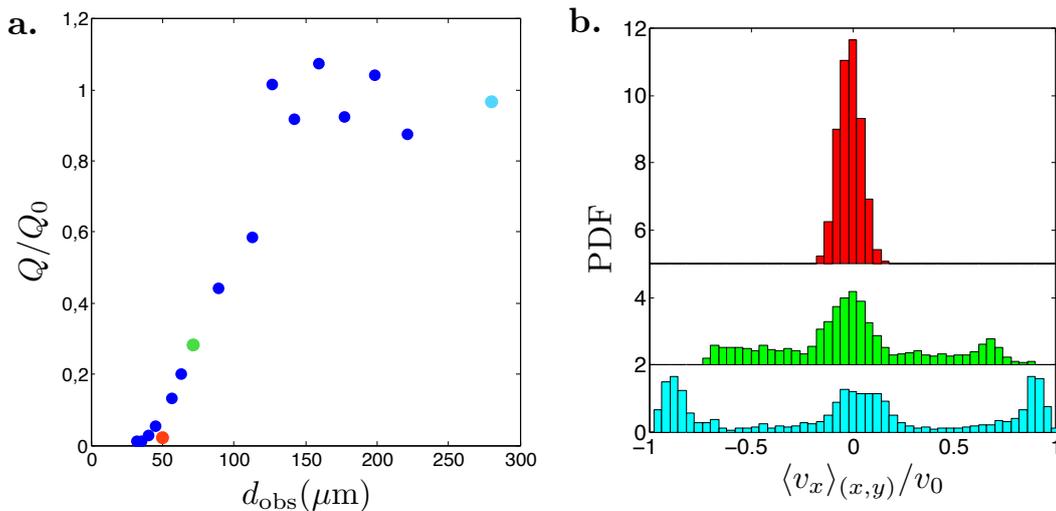


FIGURE 8.8: **a.** Paramètre d'ordre  $Q = |\langle e^{2i\theta} \rangle|$  en fonction de la distance typique inter-obstacles.  $\langle . \rangle$  désigne une moyenne temporelle et d'ensemble sur les rouleurs. Le paramètre d'ordre  $Q$  est normalisé par sa valeur en l'absence d'obstacles  $Q_0 = 0.32$ . Chaque point correspond à une moyenne sur deux expériences avec la même fraction surfacique en obstacles mais avec deux réalisations du désordre différentes. Les points colorés différemment sont ceux pour lesquels on trace dans la figure **b.** les distributions de probabilités de la moyenne spatiale de la composante suivant  $x$  de la vitesse des rouleurs, normalisée par l'amplitude moyenne de la vitesse des rouleurs  $v_0$ .

- Pour  $d_{\text{obs}} \gtrsim 120 \mu\text{m}$ , on a vu que la bande est très similaire à celle qui se propage en l'absence d'obstacles. Le nombre de rouleurs qui participent au mouvement dirigé est élevé et à peu près constant. La paramètre d'ordre est donc stable à une valeur bien supérieure à 0. La distribution de probabilités de la moyenne spatiale de la composante suivant  $x$  de la vitesse des rouleurs montre trois pics nets, voir Fig. 8.8 b. Le pic centré en 0 correspond aux moments où la bande est en dehors de la fenêtre d'observation tandis que les pics situés de manière symétrique de part et d'autre de 0 correspondent aux passages de la bande dans la fenêtre (dans un sens et dans l'autre).
- Pour  $50 \mu\text{m} \lesssim d_{\text{obs}} \lesssim 120 \mu\text{m}$ , la longueur de la bande et l'amplitude de son front diminuent. Au contraire, la fraction surfacique en particules en dehors de la bande (dans le fond de type gaz) augmente. Le nombre de rouleurs impliqués dans la bande est plus faible et le paramètre d'ordre diminue.
- Pour  $d_{\text{obs}} \lesssim 50 \mu\text{m}$ , le paramètre d'ordre est proche de 0 ce qui est bien consistant avec le fait que l'on ne voit plus de mouvement cohérent aux échelles de longueur de la fenêtre d'observation. C'est bien ce que montre aussi la distribution de probabilités de la moyenne spatiale de  $v_x$  qui pour  $d_{\text{obs}} \lesssim 50 \mu\text{m}$  est uniquement piquée en 0.

La courbe du paramètre d'ordre de la figure Fig. 8.8 a. peut laisser penser que la transition vers  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$  entre l'état bande partiellement ordonné et l'état désordonné est continue. Cependant, cette observation n'est qu'un artefact de notre choix du paramètre d'ordre qui ne rend pas compte visuellement du caractère abrupt de la transition. Dans nos films, on voit bien qu'autour de  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$ , diminuer très légèrement la distance inter-obstacles nous fait passer d'un état où un nombre important de rouleurs participent à un mouvement dirigé à l'échelle de la piste, à un état où les rouleurs ont un comportement de marcheurs aléatoires persistants. On voit mieux le caractère discontinu de la transition en traçant le ratio entre le nombre de rouleurs impliqués dans la bande et le nombre total de rouleurs dans la piste en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . Ce ratio est déterminé indirectement en mesurant pour chaque piste la fraction surfacique en particules en dehors de la bande  $\Phi_\infty$  et la fraction surfacique moyenne  $\Phi_0$ . La fraction du nombre de rouleurs faisant partie de la bande est simplement égale à  $(\Phi_\infty - \Phi_0)/\Phi_0$ , voir Fig. 8.9. De  $d_{\text{obs}} \sim 56 \mu\text{m}$  à  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$ , on passe d'un état où environ 25% des rouleurs de la piste - soit plusieurs milliers de rouleurs - participent à un mouvement dirigé à l'échelle du circuit à un état où il n'y a plus du tout de mouvement cohérent à cette échelle.

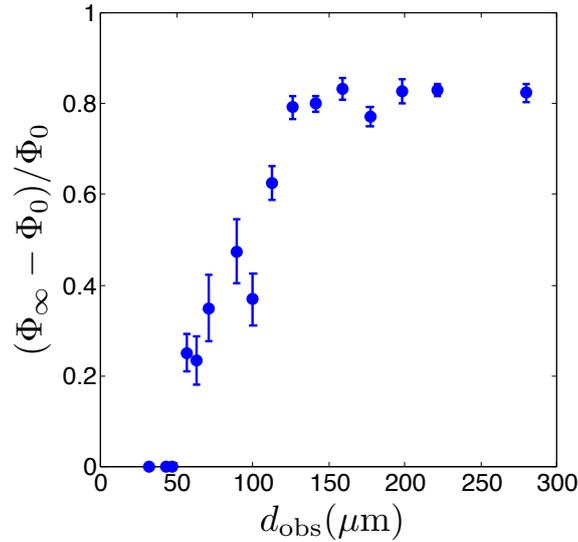


FIGURE 8.9: Ratio entre le nombre de particules dans la bande et le nombre total de particules dans la piste en fonction de  $d_{\text{obs}}$ .

### 8.3.3.2 Morphologie des bandes

Pour tenter de comprendre comment le désordre spatial inhibe la dynamique collective des rouleurs, il convient d'être plus quantitatif sur les caractéristiques de la phase bande. La figure Fig. 8.10 montre les mesures expérimentales de la longueur des bandes, de la vitesse de leurs fronts et de l'amplitude en densité de ceux-ci en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . Ces mesures sont effectuées en étudiant en plusieurs endroits de la piste les profils temporels du courant en particules dans la direction  $x$  moyenné sur la largeur de la fenêtre d'observation, voir Fig. 8.10 a. Encore une fois, on va distinguer trois régimes en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . Mais tout d'abord, notons que la figure Fig. 8.10 b. montre que la vitesse du front de la bande - quand elle existe - est toujours égale à la vitesse individuelle des rouleurs et ce quelle que soit la distance typique entre les obstacles. Discutons maintenant de la longueur des bandes et de l'amplitude de leurs fronts en fonction de  $d_{\text{obs}}$ .

- Pour  $d_{\text{obs}} \gtrsim 120 \mu\text{m}$ , on voit que la longueur de la bande varie peu, voir Fig. 8.10 c., ce qui est bien en accord avec nos observations. Il en est de même de la fraction surfacique en particules au niveau du front de la bande qui est stable autour de 80% de sa valeur en absence d'obstacles, voir Fig. 8.10 d.
- Pour  $50 \mu\text{m} \lesssim d_{\text{obs}} \lesssim 120 \mu\text{m}$ , la longueur de la bande diminue lorsqu'on baisse  $d_{\text{obs}}$ . A  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$ , la bande est environ deux fois plus courte qu'en l'absence d'obstacles. L'amplitude du front diminue elle aussi d'un facteur deux sur le même intervalle.
- Pour  $d_{\text{obs}} \lesssim 50 \mu\text{m}$ , il n'y a plus de bande dans la piste.

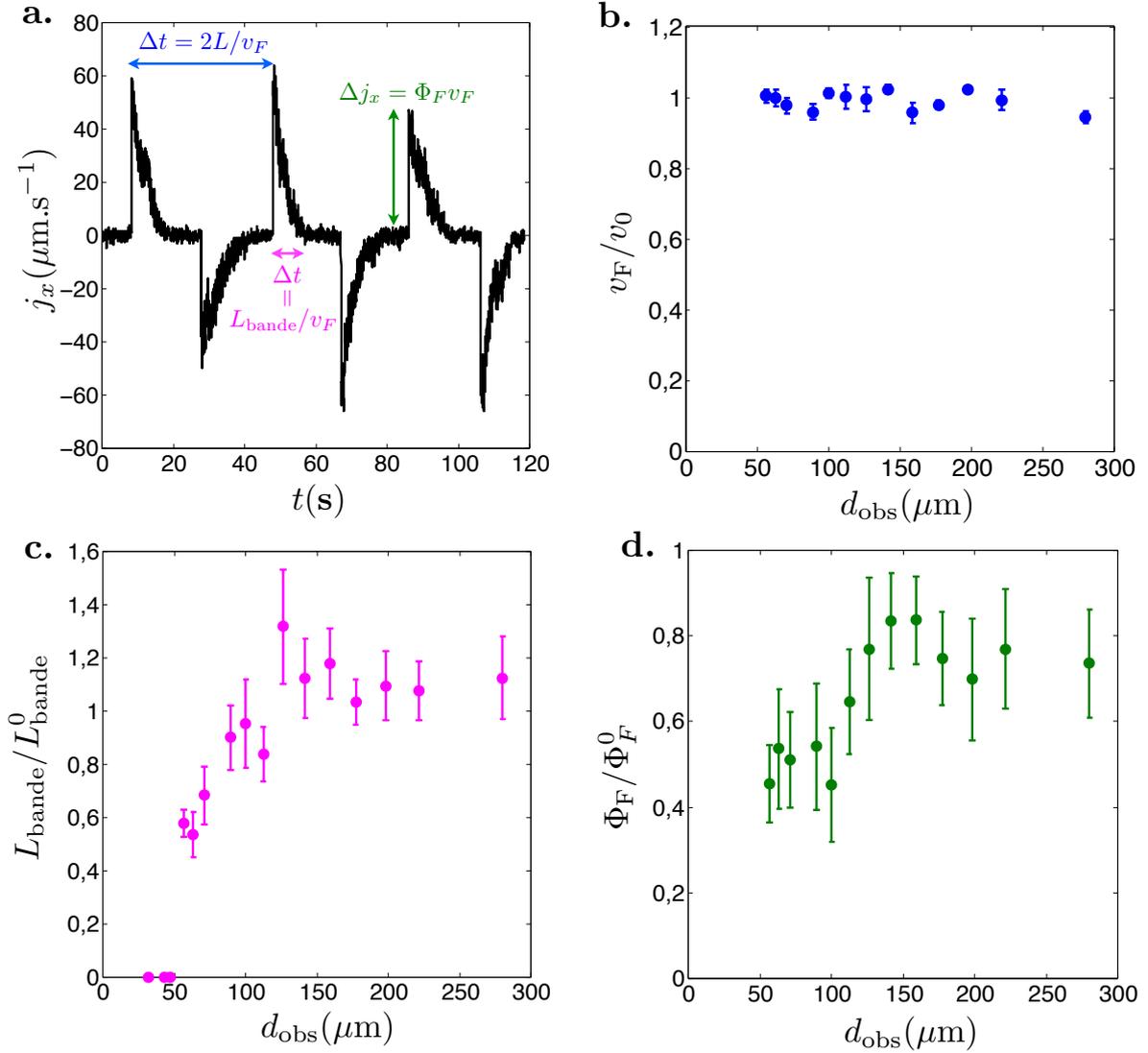


FIGURE 8.10: Caractéristiques de la bande en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . **a.** Exemple d'un profil temporel du courant en particules dans la direction  $x$  moyenné dans une bande verticale de largeur  $25 \mu\text{m}$  et de hauteur égale à la hauteur de la fenêtre d'observation. Pour chaque expérience, on produit 5 profils en 5 endroits différents de la fenêtre d'observation. Ces profils nous permettent de mesurer la vitesse  $v_F$  du front de la bande (la longueur  $L$  de la piste étant connue) puis de calculer la longueur de la bande,  $L_{\text{bande}}$ , et la fraction surfacique en particules au niveau du front,  $\Phi_F$ . **b.** Vitesse du front de la bande,  $v_F$ , normalisée par la vitesse des particules en dehors de la bande,  $v_0$ , en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . Les barres d'erreurs correspondent à 2 fois l'écart-type de la détermination statistique de la vitesse du front à partir des profils temporels du courant. **c.** Longueur de la bande,  $L_{\text{bande}}$ , normalisée par la longueur de la bande en l'absence d'obstacles,  $L_{\text{bande}}^0$ , en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . Les barres d'erreurs correspondent à 2 écarts-types. **d.** Fraction surfacique en particules au front de la bande,  $\Phi_F$ , normalisée par la fraction surfacique en particules au front de la bande en l'absence d'obstacles,  $\Phi_F^0$ , en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . Les barres d'erreurs correspondent à 2 écarts-types.

Toutes ces mesures confirment le fait qu'autour de  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$ , on passe de manière abrupt d'un état avec une bande macroscopique de plusieurs millimètres de longueur se propageant le long de la piste, à un état désordonné. Cependant, à elles seules, ces données morphologiques nous apportent peu d'information sur les mécanismes qui inhibent la dynamique collective des rouleurs. Pour tenter d'expliquer ce que l'on observe dans nos expériences, il nous faut regarder ce qui se passe à un niveau plus local.

### 8.3.3.3 Sillage dans un liquide polaire et destruction des motifs bandes

Les bandes sont des objets asymétriques, avec un front dense et très polarisé à l'avant, et une queue dans laquelle la densité et la polarisation décroissent de manière exponentielle. Cette asymétrie nous conduit à étudier l'impact des obstacles au niveau local à la fois sur des groupes denses et polarisés de rouleurs au niveau du front de la bande, et sur des groupes peu denses et faiblement polarisés au niveau de la queue. Concentrons-nous d'abord sur le premier cas. La figure Fig. 8.11 montre le courant local dans la direction  $x$  lors d'un passage du front de la bande de la gauche vers la droite pour des pistes avec des fractions surfaciques en obstacles croissantes. Pour qu'en chaque point le courant soit

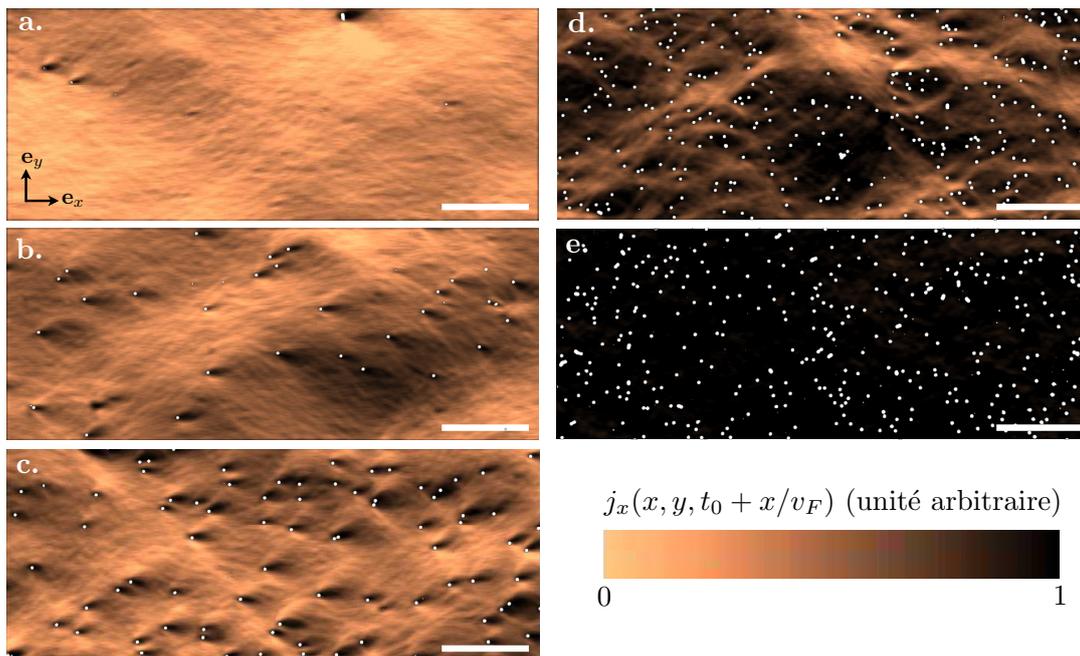


FIGURE 8.11: Champs du courant en particules dans la direction longitudinale pendant le passage du front de la bande et pour différentes fractions surfaciques en obstacles. Le courant en  $x$  est déterminé au temps  $t = t_0 + x/v_F$  où  $t_0$  est le moment où la bande entre dans la fenêtre d'observation et  $v_F$  est la vitesse du front de la bande. Les points blancs correspondent aux obstacles. Barres d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ . **a.**  $d_{\text{obs}} = \infty$ . **b.**  $d_{\text{obs}} = 177 \mu\text{m}$ . **c.**  $d_{\text{obs}} = 112 \mu\text{m}$ . **d.**  $d_{\text{obs}} = 57 \mu\text{m}$ . **e.**  $d_{\text{obs}} = 50 \mu\text{m}$ .

calculé au moment du passage du front de la bande, le courant en  $x$  est déterminé au temps  $t = t_0 + x/v_F$  où  $t_0$  est le moment où la bande entre dans la fenêtre d'observation et  $v_F$  est la vitesse du front de la bande. Encore une fois, discutons de ces graphiques en fonction de  $d_{\text{obs}}$ .

- $d_{\text{obs}} \gtrsim 120 \mu\text{m}$  : la figure Fig. 8.11 a. montre le passage de la bande dans une piste sans obstacles (on voit tout de même quelques impuretés). Le courant en particules est élevé et homogène, ce qui traduit le passage d'un front polarisé qui occupe toute la largeur de la fenêtre d'observation. La figure Fig. 8.11 b. correspond au passage de la bande dans une piste où la fraction surfacique en obstacles est faible, et où la distance typique inter-obstacles vaut  $d_{\text{obs}} \sim 177 \mu\text{m}$ . On constate de suite que le courant en particules est plus hétérogène. Lorsque le front rencontre un obstacle, il se sépare en deux branches qui contournent l'obstacle par le haut et par le bas. Si l'obstacle est isolé, ces deux branches se rejoignent derrière l'obstacle à une distance de l'ordre de quelques fois le diamètre de l'obstacle. Un obstacle isolé dans un liquide polaire génère donc un sillage de grande taille dans lequel la fraction surfacique en particules est nulle. Si le front rencontre un groupe d'obstacles, suivant la configuration de ceux-ci, il peut être séparé sur des distances encore plus grandes, de l'ordre de quelques fois la distance typique inter-obstacles.

Dans les pistes sans obstacles, la fraction surfacique en particules au front est limitée par la répulsion électrostatique entre les particules. Lorsque des obstacles sont présents, on doit prendre en compte une contrainte supplémentaire liée au couplage répulsif des particules avec les obstacles et aux sillages qui en résultent. Puisque ces sillages sont des zones où la densité en particules est nulle, la fraction surfacique moyennée sur la largeur de la fenêtre diminue forcément. Cependant, pour  $d_{\text{obs}} \gtrsim 120 \mu\text{m}$ , les obstacles sont peu nombreux et le courant n'est affecté que de manière locale par ceux-ci. Les variations de densité au front sont donc faibles comme on l'a déjà vu dans la figure Fig. 8.10 d.

- $50 \mu\text{m} \lesssim d_{\text{obs}} \lesssim 120 \mu\text{m}$  : la figure Fig. 8.11 c. correspond au passage du front de la bande dans une piste où la distance typique inter-obstacles vaut  $d_{\text{obs}} \sim 112 \mu\text{m}$ . Les obstacles sont plus nombreux et lorsqu'ils forment des groupes, ils créent des zones où le liquide polaire ne pénètre quasiment pas. Ainsi, le couplage répulsif avec les obstacles entraîne les rouleurs dans des chemins qui contournent ces zones. Pour  $d_{\text{obs}} \sim 112 \mu\text{m}$ , ces chemins sont nombreux et répartis sur toute la largeur de la piste. La bande parvient à se propager facilement. Pour  $d_{\text{obs}} \sim 57 \mu\text{m}$ , voir Fig. 8.11 d., les obstacles sont trop nombreux pour qu'un liquide polaire puisse passer sur toute la largeur de la piste. Il n'existe plus qu'un ou deux chemins très étroits dans lesquels les rouleurs parviennent à rester alignés. Une bande se propage toujours le long de la piste mais l'amplitude de son front est très diminuée.

- $d_{\text{obs}} \lesssim 50 \mu\text{m}$  : la figure Fig. 8.11 e montre le courant local dans une piste où  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$  et où il n’y a plus de bande qui se propage. La fraction surfacique en obstacles est tellement grande que des groupes cohérents de rouleurs ne parviennent pas à se former durablement. Dès qu’un groupe de quelques rouleurs alignés se constitue, il rencontre plusieurs obstacles qui lui font perdre sa cohérence. Le mouvement collectif est inhibé aux échelles de longueur supérieures à quelques fois  $d_{\text{obs}}$ .

Ces graphiques nous permettent de comprendre la diminution de l’amplitude du front des bandes quand on diminue  $d_{\text{obs}}$ , ainsi que la destruction de la phase bande autour de  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$ . Le couplage répulsif avec les obstacles dirige les rouleurs de la bande dans des chemins qui deviennent de plus en plus étroits et tortueux au fur et à mesure que la densité en obstacles augmente. A  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$ , la densité en obstacles est telle que des groupes polarisés de rouleurs se voient très rapidement désagrégés par les interactions multiples avec les obstacles. Il n’y a plus de propagation possible à l’échelle de la piste.

#### 8.3.3.4 Pourquoi la longueur des bandes diminue ?

Dans le paragraphe précédent, on a vu pourquoi l’amplitude du front de la bande diminue quand on augmente la densité en obstacles. *A priori*, il n’est pas évident que parce que l’amplitude du front diminue, la longueur de la bande doit diminuer elle aussi. Cependant, la figure Fig. 8.10 c. étudiée plus haut montre que c’est le cas. La question du mécanisme qui fixe la longueur des bandes reste ouverte.

On a vu au début de cette section que les diminutions combinées de la longueur et de l’amplitude du front de la bande se traduisent par une diminution du nombre de rouleurs dans la bande. Celui-ci diminue entre  $d_{\text{obs}} \sim 112 \mu\text{m}$  et  $d_{\text{obs}} \sim 50 \mu\text{m}$  avant de chuter brutalement à 0, voir Fig. 8.9. Cette diminution du nombre de particules dans la bande implique forcément une augmentation inverse du nombre de rouleurs dans le fond de type gaz (puisque  $\Phi_0$  est constante), voir Fig. 8.12.

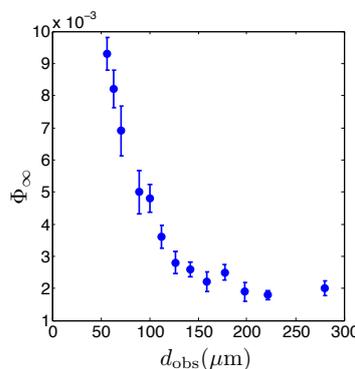


FIGURE 8.12: Fraction surfacique en rouleurs en dehors de la bande,  $\Phi_\infty$ , en fonction de la distance typique inter-obstacles,  $d_{\text{obs}}$ .

Comment expliquer cette augmentation ? Deux explications - pas forcément exclusives l'une de l'autre - sont envisageables. La première est que la bande se fait "grignoter" par l'arrière au fur et à mesure qu'on augmente la densité en obstacles. En effet, lorsqu'un groupe de rouleurs alignés de faible densité arrive sur un obstacle, les particules qui sont déviées au dessus et en dessous de l'obstacle ne rencontrent pas beaucoup de particules ayant un mouvement dans la direction longitudinale et qui seraient susceptibles de les réaligner. La présence d'obstacle fixerait donc une limite basse à la polarisation/densité des groupes de rouleurs qui peuvent se propager de façon cohérente. Ce scénario est supporté par la mesure de la longueur de persistance des trajectoires dans la phase gaz (en dehors de la bande) en fonction de  $d_{\text{obs}}$ , voir Fig. 8.13 a.

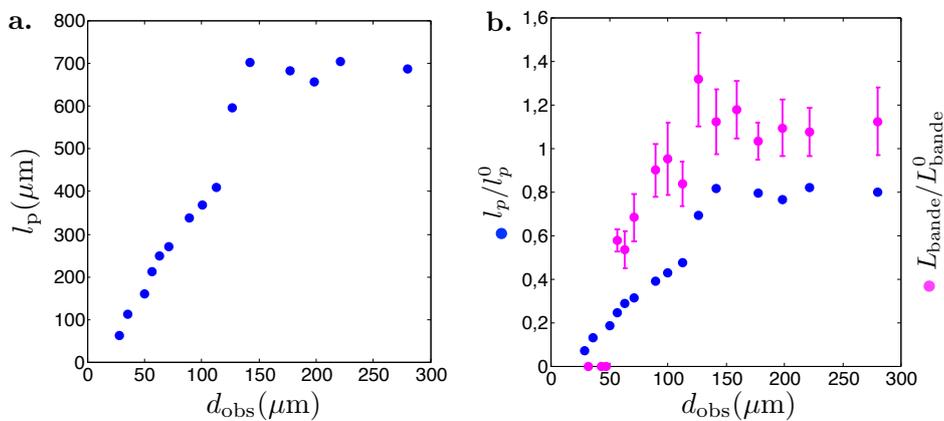


FIGURE 8.13: **a.** Longueur de persistance des trajectoires des rouleurs en dehors de la bande en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . **b.** En bleu : longueur de persistance des trajectoires des rouleurs en dehors de la bande normalisée par la longueur de persistance en l'absence d'obstacles en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . En mauve : longueur de la bande normalisée par la longueur de la bande en l'absence d'obstacles en fonction de  $d_{\text{obs}}$ . On constate que les décroissances des deux courbes sont concomitantes.

A partir de  $d_{\text{obs}} \sim 120 \mu\text{m}$ , les obstacles sont assez nombreux pour affecter significativement la dynamique des particules dans la phase diluée, et la longueur de persistance diminue. La concomitance entre la décroissance de la longueur de persistance et celle de la longueur des bandes, voir Fig. 8.13 b., laisse penser que la bande perd bien des particules par l'arrière quand on augmente le nombre d'obstacles.

Une autre explication est cependant envisageable. On peut penser que le taux de décroissance de la polarisation/densité dans la queue de la bande, fixé par des mécanismes que nous ne connaissons pas, est constant voire diminue quand on augmente le nombre d'obstacles. Puisque la polarisation/densité au front diminue, cela impliquerait forcément que la longueur des bandes diminue elle aussi. Ce scénario est supporté par la concomitance entre la décroissance de l'amplitude du front des bandes et celle de leurs longueurs, voir

Fig. 8.10 c. et d. Pour l'instant, nous n'avons pas réalisé de mesure qui nous permette de trancher en faveur d'un scénario ou d'un autre, ou d'être sûr que les deux interviennent. Une étude plus précise de la forme des bandes en fonction de  $d_{\text{obs}}$  nous apportera peut-être des réponses dans le futur.

## 8.4 Perspectives

Le système expérimental présenté dans ce chapitre offre de nombreuses possibilités d'études. N'y ayant consacré "que" la dernière année de ma thèse, je n'ai pas pu l'exploiter de manière approfondie et d'autres travaux viendront je l'espère compléter ceux présentés dans ce chapitre. Un point qui nous intéresse particulièrement concerne la dynamique des rouleurs en régime dilué en présence d'un fort désordre. Nous avons déjà vu dans la figure Fig. 8.13 que la longueur de persistance dans la phase diluée à l'arrière de la bande diminue fortement sous  $d_{\text{obs}} \sim 120 \mu\text{m}$ . Ce n'est pas étonnant puisque le couplage avec les obstacles dévie les trajectoires des rouleurs. Cependant, des questions intéressantes découlent de ces interactions. Est-ce que le comportement des rouleurs reste diffusif à temps long même lorsque la fraction surfacique en obstacles est élevée ? Les particules ne peuvent-elles pas se retrouver piégées au milieu d'obstacles ? Est-ce que cela pourrait conduire à un comportement sous-diffusif ? Ces questions sont liées à des observations que nous avons faites dans des pistes pourvues d'obstacles plus gros, de rayon  $a = 20 \mu\text{m}$ . Dans ces pistes, on observe également que l'état bande disparaît quand on augmente la fraction surfacique en obstacles. Cependant, la dynamique des rouleurs dans les chambres où le désordre est élevé est différente de celle qu'on a observée pour des obstacles de rayon  $a = 5 \mu\text{m}$ . Les rouleurs se retrouvent régulièrement piégés dans des vortex formés au milieu de groupes d'obstacles, voir Fig. 8.14 et vidéo disponible à l'adresse : <http://blog.espci.fr/nicolasdesreumaux/files/2014/09/obs40um.mov>. Ces vortex sont constitués de plusieurs dizaines de rouleurs qui tournent dans le même sens. Il serait intéressant d'étudier la distribution des temps de piégeage des particules dans ces vortex, et de voir si elle implique un comportement sous-diffusif des rouleurs. Il faudrait réaliser des expériences à différentes fractions surfaciques en particules pour voir si le piégeage se fait aussi pour des particules isolées ou si c'est un phénomène essentiellement collectif. Enfin, je termine par une autre perspective qui me paraît intéressante et qui fait le lien avec la première partie de ce manuscrit. On pourrait étudier comment le désordre spatial affecte la propagation d'ondes de densité linéaires, que ce soit celles que l'on a mises en évidence expérimentalement dans les émulsions advectées, ou celles qui sont prédites dans la phase liquide polaire de notre système de rouleurs colloïdaux. Ces systèmes présenteront-ils une transition de localisation ?

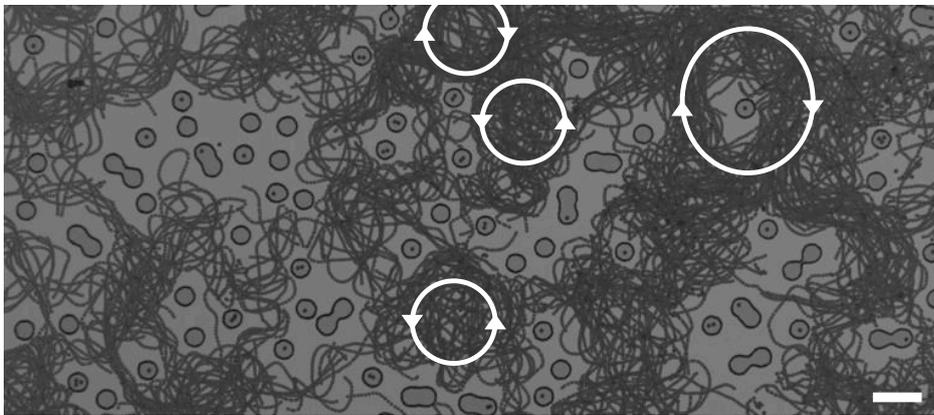


FIGURE 8.14: Rouleurs dans une chambre pourvue d'obstacles de rayon  $a = 20 \mu\text{m}$ . Superposition de 50 images espacées de 5 ms. Les flèches blanches indiquent les sens de rotation de quelques vortex. Il n'y a pas de mouvement dirigé à l'échelle de la fenêtre d'observation.  $E_0/E_Q = 1.49$ ,  $d_{\text{obs}} \sim 110 \mu\text{m}$ ,  $\Phi_0 \sim 10^{-2}$ . Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

## Bibliographie

- [1] Allen T. Chwang and T. Yao-Tsu Wu. Hydromechanics of low-reynolds-number flow. part 2. singularity method for stokes flows. *Journal of Fluid Mechanics*, 67 :787–815, 2 1975.
- [2] Imre M. Jánosi, Tamás Tél, Dietrich E. Wolf, and Jason A. C. Gallas. Chaotic particle dynamics in viscous flows : The three-particle stokeslet problem. *Phys. Rev. E*, 56 :2858–2868, Sep 1997.
- [3] Sriram Ramaswamy. Issues in the statistical mechanics of steady sedimentation. *Advances in Physics*, 50(3) :297–341, 2001.
- [4] Bloen Metzger, Maxime Nicolas, and Elisabeth Guazzelli. Falling clouds of particles in viscous fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, 580 :283–301, 6 2007.
- [5] H. Nicolai and E. Guazzelli. Effect of the vessel size on the hydrodynamic diffusion of sedimenting spheres. *Physics of Fluids (1994-present)*, 7(1) :3–5, 1995.
- [6] P. N. Segrè, E. Herbolzheimer, and P. M. Chaikin. Long-range correlations in sedimentation. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :2574–2577, Sep 1997.
- [7] Elisabeth Guazzelli and John Hinch. Fluctuations and instability in sedimentation. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 43(1) :97–116, 2011.
- [8] G. K. Batchelor. Sedimentation in a dilute dispersion of spheres. *Journal of Fluid Mechanics*, 52 :245–268, 3 1972.
- [9] J.P. Hulin. *Hydrodynamics of dispersed media : articles based on presentations made at the 4th EPS Liquid State Conference on the Hydrodynamics of Dispersed Media held in Arcachon, France, 24-27 May 1988*. Random materials and processes. North-Holland, 1990.
- [10] R. Deegan, O. Bakajin, and T. Dupont. Capillary flow as the cause of ring stains from dried liquid drops. *Nature*, 1997.
- [11] Robert D. Deegan, Olgica Bakajin, Todd F. Dupont, Greg Huber, Sidney R. Nagel, and Thomas A. Witten. Contact line deposits in an evaporating drop. *Phys. Rev. E*, 62 :756–765, Jul 2000.

- [12] Aleksander S. Popel and Paul C. Johnson. Microcirculation and hemorheology. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 37(1) :43–69, 2005.
- [13] David C. Duffy, J. Cooper McDonald, Olivier J. A. Schueller, and George M. Whitesides. Rapid prototyping of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane). *Analytical Chemistry*, 70(23) :4974–4984, 1998. PMID : 21644679.
- [14] H.A. Stone, A.D. Stroock, and A. Ajdari. Engineering flows in small devices. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 36(1) :381–411, 2004.
- [15] Haim Diamant. Hydrodynamic interaction in confined geometries. *Journal of the Physical Society of Japan*, 78(4), 2009.
- [16] N. Liron and S. Mochon. Stokes flow for a stokeslet between two parallel flat plates. *Journal of Engineering Mathematics*, 10(4) :287–303, 1976.
- [17] Dhananjay Dendukuri and Patrick S. Doyle. The synthesis and assembly of polymeric microparticles using microfluidics. *Advanced Materials*, 21(41) :4071–4086, 2009.
- [18] Yuriko Sassa, Shuhei Shibata, Yasutaka Iwashita, and Yasuyuki Kimura. Hydrodynamically induced rhythmic motion of optically driven colloidal particles on a ring. *Phys. Rev. E*, 85 :061402, Jun 2012.
- [19] Harel Nagar and Yael Roichman. Collective excitations of hydrodynamically coupled driven colloidal particles. *Phys. Rev. E*, 90 :042302, Oct 2014.
- [20] Tsevi Beatus, Tsvi Tlusty, and Roy Bar-Ziv. Phonons in a one-dimensional microfluidic crystal. *Nature Physics*, 2(11) :743–748, November 2006.
- [21] Nicolas Champagne. *Dynamique de trafic dans les réseaux microfluidiques modèles : Embouteillages, chocs et avalanches*. PhD thesis, Université Paris Diderot (Paris 7), 2011.
- [22] Nicolas Champagne, Romain Vasseur, Adrien Montourcy, and Denis Bartolo. Traffic jams and intermittent flows in microfluidic networks. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :044502, Jul 2010.
- [23] Nicolas Champagne, Eric Lauga, and Denis Bartolo. Stability and non-linear response of 1d microfluidic-particle streams. *Soft Matter*, 7 :11082–11085, 2011.
- [24] Joseph M. Crowley. Clumping instability of a falling horizontal lattice. *Physics of Fluids (1958-1988)*, 19(9) :1296–1300, 1976.
- [25] Rangan Lahiri and Sriram Ramaswamy. Are steadily moving crystals unstable? *Phys. Rev. Lett.*, 79 :1150–1153, Aug 1997.

- [26] J. Blawdziewicz, R.H. Goodman, N. Khurana, E. Wajnryb, and Y.-N. Young. Nonlinear hydrodynamic phenomena in stokes flow regime. *Physica D : Nonlinear Phenomena*, 239(14) :1214 – 1224, 2010.
- [27] M. Baron, J. Bławdziewicz, and E. Wajnryb. Hydrodynamic crystals : Collective dynamics of regular arrays of spherical particles in a parallel-wall channel. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :174502, Apr 2008.
- [28] F. Rouyer, D. Lhuillier, J. Martin, and D. Salin. Structure, density, and velocity fluctuations in quasi-two-dimensional non-brownian suspensions of spheres. *Physics of Fluids (1994-present)*, 12(5) :958–963, 2000.
- [29] Tsevi Beatus, Tsvi Tlusty, and Roy Bar-Ziv. Burgers shock waves and sound in a 2d microfluidic droplets ensemble. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :114502, Sep 2009.
- [30] Itamar Shani, Tsevi Beatus, Roy H Bar-Ziv, and Tsvi Tlusty. Long-range orientational order in two-dimensional microfluidic dipoles. *Nature Physics*, 10(2) :140–144, 2014.
- [31] Irene Giardina. Collective behavior in animal groups : Theoretical models and empirical studies. *HFSP Journal*, 2(4) :205–219, 2008.
- [32] Tamás Vicsek and Anna Zafeiris. Collective motion. *Physics Reports*, 517(3) :71–140, 2012. Collective motion.
- [33] H. P. Zhang, Avraham Beer, E.-L. Florin, and Harry L. Swinney. Collective motion and density fluctuations in bacterial colonies. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 107(31) :13626–13630, 2010.
- [34] Tamás Vicsek, András Czirók, Eshel Ben-Jacob, Inon Cohen, and Ofer Shochet. Novel type of phase transition in a system of self-driven particles. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :1226–1229, Aug 1995.
- [35] Hugues Chaté, Francesco Ginelli, Guillaume Grégoire, and Franck Raynaud. Collective motion of self-propelled particles interacting without cohesion. *Phys. Rev. E*, 77 :046113, Apr 2008.
- [36] Guillaume Grégoire and Hugues Chaté. Onset of collective and cohesive motion. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :025702, Jan 2004.
- [37] Florian Thüroff, Christoph A. Weber, and Erwin Frey. Numerical treatment of the boltzmann equation for self-propelled particle systems. *Phys. Rev. X*, 4 :041030, Nov 2014.
- [38] John Toner and Yuhai Tu. Long-range order in a two-dimensional dynamical XY model : How birds fly together. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :4326–4329, Dec 1995.

- [39] Eric Bertin, Michel Droz, and Guillaume Grégoire. Boltzmann and hydrodynamic description for self-propelled particles. *Phys. Rev. E*, 74 :022101, Aug 2006.
- [40] Aparna Baskaran and M. Cristina Marchetti. Hydrodynamics of self-propelled hard rods. *Phys. Rev. E*, 77 :011920, Jan 2008.
- [41] Jean-Baptiste Caussin, Alexandre Solon, Anton Peshkov, Hugues Chaté, Thierry Dauxois, Julien Tailleur, Vincenzo Vitelli, and Denis Bartolo. Emergent spatial structures in flocking models : A dynamical system insight. *Phys. Rev. Lett.*, 112 :148102, Apr 2014.
- [42] M. C. Marchetti, J. F. Joanny, S. Ramaswamy, T. B. Liverpool, J. Prost, Madan Rao, and R. Aditi Simha. Hydrodynamics of soft active matter. *Rev. Mod. Phys.*, 85 :1143–1189, Jul 2013.
- [43] Volker Schaller, Christoph Weber, Christine Semmrich, Erwin Frey, and Andreas R Bausch. Polar patterns of driven filaments. *Nature*, 467(7311) :73–77, 2010.
- [44] Julien Deseigne, Olivier Dauchot, and Hugues Chaté. Collective motion of vibrated polar disks. *Physical review letters*, 105(9) :098001, 2010.
- [45] Julien Deseigne, Sébastien Léonard, Olivier Dauchot, and Hugues Chaté. Vibrated polar disks : spontaneous motion, binary collisions, and collective dynamics. *Soft Matter*, 8(20) :5629–5639, 2012.
- [46] G. Quincke. Ueber rotationen im constanten electrischen felde. *Annalen der Physik*, 295(11) :417–486, 1896.
- [47] P. W. Anderson. Absence of diffusion in certain random lattices. *Phys. Rev.*, 109 :1492–1505, Mar 1958.
- [48] E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello, and T. V. Ramakrishnan. Scaling theory of localization : Absence of quantum diffusion in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, 42 :673–676, Mar 1979.
- [49] Diederik S Wiersma, Paolo Bartolini, Ad Lagendijk, and Roberto Righini. Localization of light in a disordered medium. *Nature*, 390(6661) :671–673, 1997.
- [50] Juliette Billy, Vincent Josse, Zhanchun Zuo, Alain Bernard, Ben Hambrecht, Pierre Luga, David Clément, Laurent Sanchez-Palencia, Philippe Bouyer, and Alain Aspect. Direct observation of anderson localization of matter waves in a controlled disorder. *Nature*, 453(7197) :891–894, 2008.

- [51] Giacomo Roati, Chiara D'Errico, Leonardo Fallani, Marco Fattori, Chiara Fort, Matteo Zaccanti, Giovanni Modugno, Michele Modugno, and Massimo Inguscio. Anderson localization of a non-interacting bose–einstein condensate. *Nature*, 453(7197) :895–898, 2008.
- [52] Hefei Hu, A Strybulevych, JH Page, Sergey E Skipetrov, and Bart A van Tiggelen. Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network. *Nature Physics*, 4(12) :945–948, 2008.
- [53] Jean-Philippe Bouchaud and Antoine Georges. Anomalous diffusion in disordered media : Statistical mechanisms, models and physical applications. *Physics Reports*, 195 :127 – 293, 1990.
- [54] Oleksandr Chepizhko, Eduardo G. Altmann, and Fernando Peruani. Optimal noise maximizes collective motion in heterogeneous media. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :238101, Jun 2013.
- [55] Oleksandr Chepizhko and Fernando Peruani. Diffusion, subdiffusion, and trapping of active particles in heterogeneous media. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :160604, Oct 2013.
- [56] Nicolas Desreumaux, Jean-Baptiste Caussin, Raphael Jeanneret, Eric Lauga, and Denis Bartolo. Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :118301, Sep 2013.
- [57] Raphael Jeanneret. *Auto-organisation, écho et trafic microfluidique*. PhD thesis, Université Paris Diderot (Paris 7), 2014.
- [58] Denis Bartolo, Guillaume Degre, Philippe Nghe, and Vincent Studer. Microfluidic stickers. *Lab Chip*, pages 274–279, 2008.
- [59] Emmanuel Delamarche, Andre Bernard, Heinz Schmid, Bruno Michel, and Hans Biebuyck. Patterned delivery of immunoglobulins to surfaces using microfluidic networks. *Science*, 276(5313) :779–781, 1997.
- [60] J.C. Crocker and G. Grier. Methods of digital video microscopy for colloidal studies. *J. Colloid Interface Sci.*, 179 :298–310, 1996.
- [61] Dhananjay Dendukuri, Shelley S. Gu, Daniel C. Pregibon, T. Alan Hatton, and Patrick S. Doyle. Stop-flow lithography in a microfluidic device. *Lab Chip*, 7 :818–828, 2007.
- [62] David C. Duffy, J. Cooper McDonald, Olivier J. A. Schueller, and George M. Whitesides. Rapid prototyping of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane). *Analytical Chemistry*, 70(23) :4974–4984, 1998.

- [63] T. Beatus, R.H. Bar-Ziv, and T. Tlusty. The physics of 2d microfluidic droplet ensembles. *Physics reports*, 2012.
- [64] H Diamant, B Cui, B Lin, and S A Rice. Correlated particle dynamics in concentrated quasi-two-dimensional suspensions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17(49) :S4047, 2005.
- [65] J. Happel and H. Brenner. *Low Reynolds Number Hydrodynamics*. Prentice-Hall international series in the physical and chemical engineering sciences. Prentice Hall, 1965.
- [66] G. K. Batchelor. The stress system in a suspension of force-free particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 41 :545–570, 4 1970.
- [67] Takuji Ishikawa. Suspension biomechanics of swimming microbes. *Journal of The Royal Society Interface*, 2009.
- [68] G. B. Jeffery. The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, 102(715) :161–179, 1922.
- [69] J.R. Melcher and G.I. Taylor. Electrohydrodynamics : a review of the role of interfacial shear stresses. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 1(1) :111–146, 1969.
- [70] N. Pannacci, L. Lobry, and E. Lemaire. How insulating particles increase the conductivity of a suspension. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :094503, 2007.
- [71] A. Bricard, J.B. Caussin, N. Desreumaux, O. Dauchot, and D. Bartolo. Emergence of macroscopic directed motion in populations of motile colloids. *Nature*, 503(7474) :95–98, 2013.
- [72] A.J. Goldman, R.G. Cox, and H. Brenner. Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall – i motion through a quiescent fluid. *Chem. Eng. Sci.*, 22 :637, 1967.
- [73] A.J. Goldman, R.G. Cox, and H. Brenner. Slow viscous motion of a sphere parallel to a plane wall – ii couette flow. *Chem. Eng. Sci.*, 22 :653, 1967.
- [74] M.E. O’Neil and K. Stewartson. On the slow motion of a sphere parallel to a nearby plane wall. *J. Fluid Mech.*, 27 :705, 2006.
- [75] Q. Liu and A. Prosperetti. Wall effects on a rotating sphere. *J. Fluid Mech.*, 1 :657, 2010.
- [76] M. Trau, D. A. Saville, and I. A. Aksay. Field-induced layering of colloidal crystals. *Science*, 272(5262) :706–709, 1996.
- [77] W. D. Ristenpart, I. A. Aksay, and D. A. Saville. Assembly of colloidal aggregates by electrohydrodynamic flow : Kinetic experiments and scaling analysis. *Phys. Rev. E*, 69 :021405, Feb 2004.

- 
- [78] Fernando Peruani and Luis G. Morelli. Self-propelled particles with fluctuating speed and direction of motion in two dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :010602, Jul 2007.
- [79] Sunil K Sainis, Vincent Germain, Cecile O Mejean, and Eric R Dufresne. Electrostatic interactions of colloidal particles in nonpolar solvents : Role of surface chemistry and charge control agents. *Langmuir*, 24(4) :1160–1164, 2008.
- [80] W. D. Ristenpart, P. Jiang, M. A. Slowik, C. Punckt, D. A. Saville, and I. A. Aksay. Electrohydrodynamic flow and colloidal patterning near inhomogeneities on electrodes. *Langmuir*, 24(21) :12172–12180, 2008.
- [81] Allison P. Berke, Linda Turner, Howard C. Berg, and Eric Lauga. Hydrodynamic attraction of swimming microorganisms by surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :038102, Jul 2008.
- [82] John Toner, Yuhai Tu, and Sriram Ramaswamy. Hydrodynamics and phases of flocks. *Annals of Physics*, 318(1) :170 – 244, 2005. Special Issue.
- [83] Antoine Bricard. *Dynamiques collectives de colloïdes auto-propulsés*. PhD thesis, Université Paris Diderot (Paris 7), 2014.
- [84] Bertin Eric, Droz Michel, and Grégoire Guillaume. Hydrodynamic equations for self-propelled particles : microscopic derivation and stability analysis. *Journal of physics. A, Mathematical and theoretical (Print)*, 42(44), 2009.
- [85] Aditi R. Simha and Sriram Ramaswamy. Hydrodynamic Fluctuations and Instabilities in Ordered Suspensions of Self-Propelled Particles. *Phys. Rev. Lett.*, 89(5), 2002.
- [86] Tommaso Brotto, Jean-Baptiste Caussin, Eric Lauga, and Denis Bartolo. Hydrodynamics of confined active fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :038101, Jan 2013.