

Transition de forme d'une goutte complexe sous cisaillement

M. DEGONVILLE^a, G. BOEDEC^a, M. LEONETTI^a

a. Aix-Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, IRPHE UMR 7342, Technopôle de Château-Gombert, 13384 Marseille, France.

(mail : degonville@irphe.univ-mrs.fr ; boedec@irphe.univ-mrs.fr ; leonetti@irphe.univ-mrs.fr)

Résumé :

La forme et la dynamique sous écoulement d'une goutte enrobée par une membrane de phospholipides sont complexes. Ce type d'objet est aussi communément appelé vésicule, et se caractérise par une interface se comportant comme un fluide incompressible, résistant à la flexion. La richesse des comportements observés se caractérisent par différents régimes menant à des oscillations, des migrations transverses ou bien encore des transitions de forme.

Nous étudions le comportement d'une vésicule dans un écoulement de cisaillement simple avec ou sans paroi. A l'équilibre thermodynamique, deux familles de forme coexistent, prolate ("ballon de rugby") ou oblate ("disque"). La présence de l'écoulement modifie la transition d'une forme à l'autre : on observe une bifurcation de type noeud-col. Elle est étudiée en fonction du dégonflement de la vésicule et de l'intensité de l'écoulement. La présence d'une paroi modifie fortement la dynamique en induisant une migration transverse qui est caractérisée.

Abstract :

The shape and the dynamics under flow of a droplet surrounded with a phospholipid membrane are quite complex. This kind of soft object, also called vesicle, is characterized by an interface which behaves like a incompressible fluid with bending rigidity. The abundance of observed behaviors are characterized by different regimes leading to oscillations, transverse migration or shape transition.

We study the behavior of a vesicle in a shear flow with or without presence of a wall nearby. Two types of shapes coexist at thermodynamic equilibrium, prolate (cigar-like) or oblate (disk-like). The flow modifies the shape transition from one to the other : a saddle-node type bifurcation can be observed. Its dependence to the deflation of the vesicle and to the flow strength is studied. The presence of a wall strongly modifies the dynamics by implying a transverse migration which is characterized.

Mots clefs : Écoulements de Stokes, vésicule, décollement, transition de forme

1 Introduction

Les vésicules sont des gouttes aqueuses enrobées par une double couche de phospholipides amphiphiles. D'une taille caractéristique de 10 à 100 μm , leurs propriétés mécaniques et biologiques en font de parfaits candidats pour la protection et le transport de principes actifs, par exemple dans le domaine médical

ou cosmétique. Les vésicules sont également utilisées comme modèle pour l'étude de la dynamique des globules rouges ; en effet, leurs membranes partagent des caractéristiques mécaniques comme la résistance à la flexion par exemple.

La vésicule est donc un objet déformable très étudié de par son intérêt biologique et ses propriétés physiques remarquables. Durant la dernière décennie, beaucoup d'études se sont intéressées à la dynamique de vésicules peu dégonflées (formes quasi-sphériques) sous écoulement externe imposé avec [1] ou sans contraste de viscosité [2]. Récemment, quelques études [3, 4] ont commencé à s'intéresser aux vésicules fortement dégonflées et dont la forme d'équilibre se rapproche de celle d'un globule rouge sain.

Notre étude porte sur des vésicules fortement dégonflées, qui, en l'absence d'écoulement, peuvent adopter deux formes d'équilibre distinctes correspondant à des minima de l'énergie de flexion [5]. Ces formes co-existent lorsque aucune sollicitation extérieure n'est appliquée : cependant, l'application d'un écoulement cisailé modifie le paysage énergétique, et la forme de la membrane évolue. Nous caractérisons la transition de forme observée et sa dépendance aux conditions initiales, avant de comparer nos résultats à la littérature existante. Dans un second temps, nous étudions l'influence de la proximité d'une paroi sur cette transition ainsi que la dynamique de décollement qui apparaît dans cette configuration.

2 Modélisation du système et paramètres adimensionnés

Une vésicule est une goutte recouverte d'une bi-couche de lipides auto-organisée et sans configuration de référence. En définissant un nombre de Reynolds basé sur la dimension caractéristique des vésicules étudiées $R_0 \sim 10 - 100 \mu m$, nous nous trouvons dans le régime de Stokes où $Re_{R_0} < 1$. L'écoulement des fluides de part et d'autre de cette membrane est donc régi par les équations de Stokes :

$$-\nabla p^{i,e} + \eta^{i,e} \Delta \mathbf{v}^{i,e} = \mathbf{0} \quad \nabla \cdot \mathbf{v}^{i,e} = 0$$

$\mathbf{v}^{i,e}$ et $p^{i,e}$ désignent respectivement la vitesse et la pression dans le fluide, η la viscosité dynamique, avec i,e indiquant respectivement le fluide intérieur ou extérieur à la membrane.

Nous considérons la membrane comme un fluide incompressible en deux dimensions sur une surface courbée. En effet, dans la gamme de contraintes hydrodynamiques étudiées, la surface de la membrane se conserve localement. Cette propriété s'exprime simplement par $\nabla_S \cdot \mathbf{v} = 0$. Pour satisfaire cette condition, un multiplicateur de Lagrange γ est associé à l'énergie E^γ , où γ est une inconnue du problème.

Pour tenir compte de la résistance à la flexion de la membrane, l'énergie associée est l'énergie libre de Helfrich E^κ [6]. La densité de force sur la membrane \mathbf{f}^m s'exprime alors comme :

$$\mathbf{f}^m = -\frac{\partial E^m}{\partial \mathbf{x}} \frac{1}{\sqrt{g}} \quad E^m = E^\kappa + E^\gamma = \frac{\kappa}{2} \int_S (2H)^2 dS + \int_S \gamma dS$$

avec $\kappa \approx 20k_B T$ le module de flexion de la membrane, H la courbure moyenne de la surface S et g le déterminant de la métrique locale.

Enfin, la membrane étant imperméable aux temps observés, on considère que la vitesse du fluide à l'interface S est égale à la vitesse de la membrane :

$$\frac{\partial \mathbf{x}}{\partial t} = \mathbf{v}_S \quad \forall \mathbf{x} \in S$$

avec \mathbf{x} la position de la membrane à l'instant t .

Notre système est défini principalement par deux nombres adimensionnés. Le volume réduit v^* représente la déformabilité de la vésicule : il est compris entre 0 et 1, avec $v^* = 1$ correspondant à une sphère et $v^* < 1$ à un dégonflement par rapport à la sphère. Le nombre capillaire Ca traduit le rapport entre les forces hydrodynamiques et les forces de flexion dans la membrane.

Ainsi, en écrivant la vitesse de l'écoulement cisaillé externe à l'infini comme étant $\mathbf{v}^\infty = \dot{\gamma}y\mathbf{e}_x$, avec $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement et \mathbf{e}_x le vecteur unitaire dans la direction de l'écoulement, on a :

$$v^* = \frac{V}{\frac{4\pi}{3}\left(\frac{A}{4\pi}\right)^{\frac{3}{2}}} \quad Ca = \frac{\dot{\gamma}\eta R_0^3}{\kappa}$$

en considérant $R_0 = \left(\frac{3V}{4\pi}\right)^{(1/3)}$ le rayon d'une sphère de même volume que la vésicule, V le volume de la vésicule et A son aire.

3 Méthode numérique

Les solutions exactes des équations de Stokes peuvent être calculées, dans le cas où la seule frontière présente est la membrane, séparant deux fluides de même viscosité, par la relation intégrale suivante [7] :

$$v_i(\mathbf{x}) = v_i^\infty(\mathbf{x}) + \frac{1}{8\pi\eta} \int_S G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_0) f_j^m(\mathbf{x}_0) dS(\mathbf{x}_0)$$

avec \mathbf{G} la fonction de Green correspondant à un écoulement libre. La surface S est discrétisée par des éléments triangulaires courbes (éléments de Loop [8]), contrairement au précédent code de calcul [9]. Il est donc possible d'appliquer cette méthode d'intégrales de frontière pour calculer le mouvement de l'interface, en combinaison avec une méthode d'éléments finis pour le calcul des forces membranaires.

La séquence de résolution numérique s'articule de la manière suivante :

1. Calcul des forces de flexion correspondant à la forme de l'interface à l'instant t par éléments finis
2. Calcul du champ de vitesse correspondant de l'interface par intégrales de frontière
3. Calcul du multiplicateur de Lagrange en imposant $\nabla_S \cdot \mathbf{v} = 0$ à chaque noeud
4. Calcul du champ de vitesse respectant la conservation de l'aire de la membrane
5. Actualisation de la position de l'interface en utilisant une méthode trapézoïdale résolue par itérations :

$$\mathbf{x}^{t+dt} = \mathbf{x}^t + \frac{dt}{2} [\mathbf{v}(\mathbf{x}^t) + \mathbf{v}(\mathbf{x}^{t+dt})]$$

La méthode numérique utilisée et sa validation est explicitée dans [10].

4 Résultats

4.1 Transition de forme sous écoulement

Nous considérons une vésicule de volume réduit $v^* \in [0.59; 0.75]$, fortement dégonflée par rapport à une sphère (pour référence, le volume réduit d'un globule est d'environ 0.60). Sans sollicitation extérieure, deux formes d'équilibre co-existent pour une vésicule à ces dégonflements d'après [5] : l'une "oblate"

biconcave, l'autre "prolate" de la forme d'un cigare, comme illustré dans la figure 1. Notre étude porte sur l'évolution de la forme biconcave lorsqu'on lui impose un écoulement cisailé \mathbf{v}^∞ (figure 2).

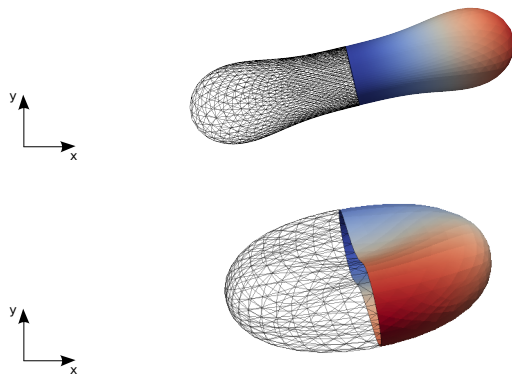


FIGURE 1 – Formes d'équilibre sans écoulement, haut : prolate, $v^* = 0.75$ - bas : oblate, $v^* = 0.648$.

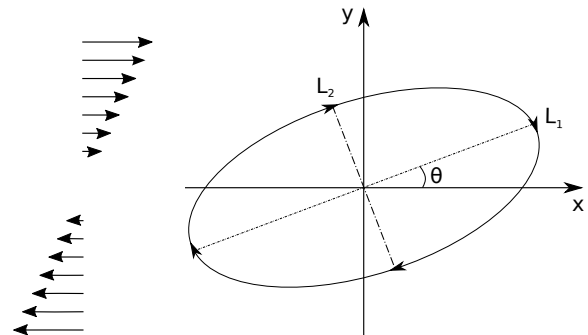


FIGURE 2 – Vésicule placée dans un écoulement cisailé.

En partant de la forme d'équilibre biconcave, on observe un étirement de la vésicule dans la direction de l'écoulement, dû à la composante élongationnelle de l'écoulement cisailé. Lorsque le nombre capillaire Ca est supérieur à un nombre capillaire critique Ca_c , cet étirement déclenche une transition vers la forme prolate illustrée figure 3. Le paramètre $\beta = (L_1 - 1)(L_2 - 1)(L_3 - 1)$ donne une mesure associée à la forme 3D de la vésicule qui permet de détecter cette transition, avec $L_{1,2,3}$ les longueurs de l'ellipsoïde d'inertie équivalent adimensionnées par R_0 , illustrées dans la figure 2. En effet, pour $\beta < 0$, la vésicule aura une forme oblate ou biconcave; pour $\beta > 0$, elle sera de forme prolate. On définira le temps caractéristique de cette transition t_{tr} comme étant le temps nécessaire pour atteindre $\beta = 0$.

On remarque que la forme prolate adoptée évolue peu en fonction de $Ca > Ca_c$ dans la gamme étudiée. De plus, en traçant le temps de transition adimensionné $\dot{\gamma}t_{tr}$ en fonction de Ca (figure 4), on remarque une évolution en $(Ca - Ca_c)^{-1/2}$ caractéristique d'une bifurcation col-noeud. Cette bifurcation est intuitive, dans le sens où deux minima d'énergie locaux co-existent, avec un maximum instable qui les sépare de par la continuité de l'énergie de flexion en fonction de la forme de la membrane. En appliquant une sollicitation extérieure, ce maximum évolue jusqu'à fusionner avec la branche biconcave, ne laissant que la branche prolate comme minimum global.

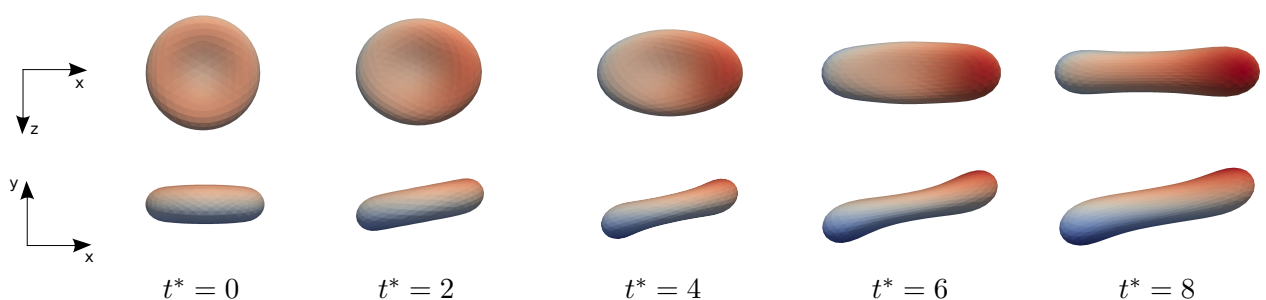


FIGURE 3 – Dynamique de transition d'une vésicule initialement oblate vers une forme prolate, $v^* = 0.635$, $Ca = 2$ avec $t^* = \frac{\dot{\gamma}\kappa}{\eta R_0^3} t$

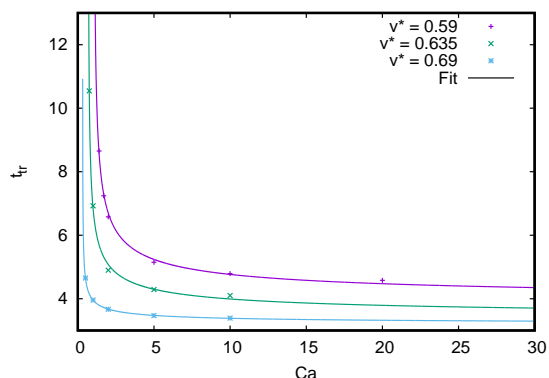


FIGURE 4 – Temps de transition t_{tr} nécessaire pour atteindre $\beta = 0$, pour différents volumes réduits $v^* \in [0.59; 0.69]$

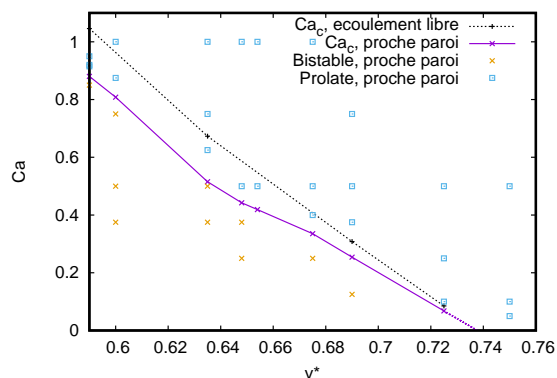


FIGURE 5 – Nombre capillaire critique de transition Ca_c pour différents volumes réduits $v^* \in [0.59; 0.725]$

La divergence du temps de transition en $(Ca - Ca_c)^{-1/2}$ à proximité du paramètre critique Ca_c nous permet d'estimer avec précision la valeur de ce paramètre pour différents dégonflements. Dans la figure 5, on observe effectivement une dépendance de Ca_c au volume réduit v^* . On remarque que même si la forme biconcave est un minimum d'énergie global pour $v^* \in [0.592; 0.651]$ [5], elle reste méta-stable pour des volumes réduits supérieurs. Nos résultats sont en accord avec [4], qui observent uniquement une forme prolata à $v^* = 0.75$ pour $Ca > 0.1$, ainsi qu'avec [11] qui notent une transition à $v^* = 0.59$ pour un nombre capillaire $Ca \in [0.92 : 1.38]$.

4.2 Dynamique de décollement d'une paroi

La vésicule est maintenant placée proche d'une paroi, dans un écoulement cisailé, à une distance $h_0 = 1.1R_0$ de son centre de gravité. Pour cela, des termes additionnels sont ajoutés à la fonction de Green \mathbf{G} pour correspondre aux conditions limites induites par la proximité de la paroi [7].

Lorsqu'on place un objet composé d'une membrane fluide dans un écoulement cisailé de Stokes à proximité d'une paroi, une vitesse de décollement apparaît, orthogonale à la paroi. En effet, la composante rotationnelle de l'écoulement induit une rotation de la membrane, appelé "tank-treading". Cette rotation entraîne le fluide entre la vésicule et la paroi, ce qui induit un gradient de pression avant-arrière sous la vésicule. La vésicule s'incline alors dans le plan de cisaillement, et se stabilise lorsque les couples générés par l'écoulement sur la vésicule inclinée et par le mouvement de tank-treading s'équilibrent. Cette inclinaison brise la symétrie avant-arrière de la vésicule. La réversibilité des équations de Stokes n'empêchant plus la migration verticale, elle migre alors loin de la paroi à une vitesse appelée *vitesse de lift* v_{ift} [12]. Cette vitesse sera définie ici comme la vitesse du centre de gravité de la vésicule.

Le processus de décollement est illustré dans la figure 6.

La validation du code de simulation en proche paroi se fait par la comparaison avec les résultats présentés dans [13] pour le décollement d'une vésicule prolata de dégonflement $v^* = 0.95$. On retrouve la dynamique observée pour $Ca = 8$ et une distance initiale à la paroi de $h_0 = 1.1R_0$, ainsi que la dépendance en h^{-2} de la vitesse de décollement loin de la paroi, avec h la distance entre la paroi et le centre de gravité de la vésicule.

Pour $v^* \in [0.59; 0.75]$, la transition de forme présentée précédemment s'observe également dans un

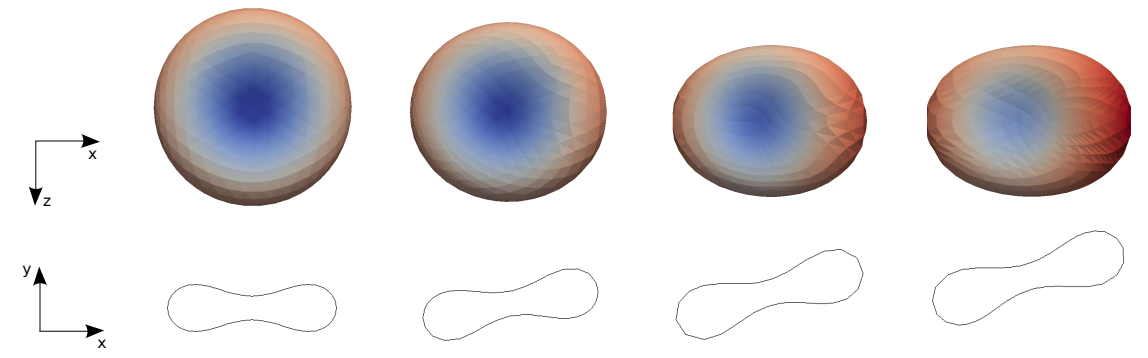


FIGURE 6 – Dynamique de décollement d’une vésicule initialement oblate, $v^* = 0.635$, $Ca = 0.375$, $h_0 = 1.1R_0$

écoulement en proche paroi. Dans le cas d’une vésicule biconcave qui évolue vers la forme prolata, la déformation s’effectue pendant la phase d’inclinaison : la vésicule s’allonge et s’affine puis s’éloigne de la paroi après avoir atteint une forme prolata, symétrique.

La vitesse de lift adimensionnée $v_{lift}/R_0\dot{\gamma}$ évolue de manière différente selon si la vésicule change de famille de forme ou pas (figure 7) loin de la paroi. On sait que la vésicule prolata a une vitesse de lift supérieure à la vésicule oblate [1] ; cependant, proche de la paroi, la tendance s’inverse, la forme biconcave ayant un décollement jusqu’à deux fois plus rapide. On observe également un sursaut dans la vitesse de lift lors de la fin de la transition, plus ou moins marqué selon la valeur de Ca .

La présence de la paroi fait apparaître une forme transitoire en S lorsque Ca s’éloigne de sa valeur critique, quelle que soit la forme de départ. Cette forme se relaxe vers la forme prolata au cours de la migration ; cependant, en augmentant le nombre capillaire suffisamment ($Ca > 10$), la tendance s’amplifie jusqu’à adopter transitoirement une forme asymétrique (figure 8). Celle-ci est qualitativement similaire à la forme PB observée pour $v^* = 0.60$ et avec un contraste de viscosité $\frac{\mu_i}{\mu_e} < 1$ dans un écoulement de cisaillement simple (sans paroi) [3].

Un autre phénomène observé est la diminution de la valeur du nombre capillaire critique Ca_c à proximité de la paroi, comparé à sa valeur en écoulement libre (figure 5). La séparation entre les situations bi-stables avec co-existence des formes biconcave et prolata, et les situations où seule la forme prolata est stable, est affectée par la présence de la paroi, de l’ordre de 20%.

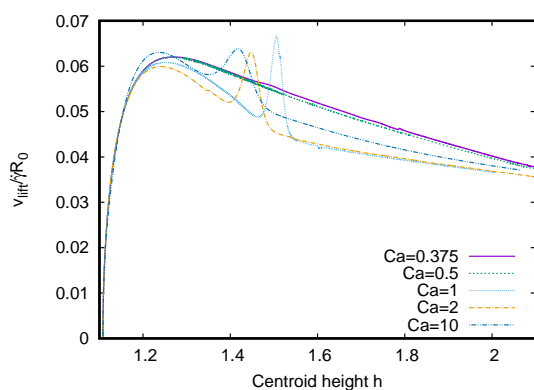


FIGURE 7 – Vitesse de décollement adimensionnée $v_{lift}/\dot{\gamma}R_0$ pour $v^* = 0.635$

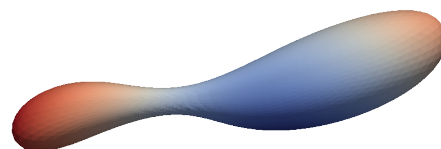


FIGURE 8 – Forme asymétrique transitoire pour $v^* = 0.6$, $Ca = 20$

5 Conclusion

Une nouvelle méthode numérique couplant intégrale de frontières et éléments finis a été développée pour étudier la dynamique de vésicules fortement dégonflées dans un écoulement cisailé. Celle-ci nous a permis de caractériser la bifurcation noeud-col qui a lieu entre les formes biconcave et prolata, et de déterminer les conditions de cette bifurcation en fonction d'un paramètre critique Ca_c et pour différents dégonflements.

Avec l'utilisation d'une fonction de Green adaptée, nous avons également étudié l'influence de la proximité d'une paroi sur la dynamique de ces vésicules. Il apparaît que la forme initiale de la vésicule influence la vitesse de décollement. De plus, nous observons un décalage du paramètre Ca_c lié aux contraintes hydrodynamiques supplémentaires dues à la présence de la paroi. Pour un fort écoulement, ces contraintes peuvent également induire l'apparition transitoire d'une forme asymétrique.

Références

- [1] T. Biben, A. Farutin, et C. Misbah, « Three-dimensional vesicles under shear flow : Numerical study of dynamics and phase diagram », *Physical Review E*, mars 2011.
- [2] G. Coupier, A. Farutin, C. Minetti, T. Podgorski, et C. Misbah, « Shape Diagram of Vesicles in Poiseuille Flow », *Physical Review Letters*, avr. 2012.
- [3] A. Farutin et C. Misbah, « Squaring, Parity Breaking, and S Tumbling of Vesicles under Shear Flow », *Physical Review Letters*, déc. 2012.
- [4] A. P. Spann, H. Zhao, et E. S. G. Shaqfeh, « Loop subdivision surface boundary integral method simulations of vesicles at low reduced volume ratio in shear and extensional flow », *Physics of Fluids*, mars 2014.
- [5] U. Seifert, K. Berndl, et R. Lipowsky, « Shape transformations of vesicles : Phase diagram for spontaneous- curvature and bilayer-coupling models », *Physical Review A*, juill. 1991.
- [6] P. B. Canham, « The minimum energy of bending as a possible explanation of the biconcave shape of the human red blood cell », *Journal of Theoretical Biology*, janv. 1970.
- [7] C. Pozrikidis, *Boundary integral and singularity methods for linearized viscous flow*. Cambridge : Cambridge Univ. Press, 1992.
- [8] C. T. Loop, « Smooth Subdivision Surfaces Based on Triangles », University of Utah, 1987.
- [9] G. Boedec, M. Leonetti et M. Jaeger, « 3D vesicle dynamics simulations with a linearly triangulated surface », *Journal of Computational Physics*, 2011.
- [10] G. Boedec, M. Leonetti, et M. Jaeger, « Isogeometric FEM-BEM simulations of drop, capsule and vesicle dynamics in Stokes flow », *Journal of Computational Physics*, soumis
- [11] H. Noguchi et G. Gompper, « Dynamics of fluid vesicles in shear flow : Effect of membrane viscosity and thermal fluctuations », *Physical Review E*, juill. 2005.
- [12] M. Abkarian et A. Viallat, « Dynamics of Vesicles in a Wall-Bounded Shear Flow », *Biophysical Journal*, août 2005.

- [13] H. Zhao, A. P. Spann, et E. S. G. Shaqfeh, « The dynamics of a vesicle in a wall-bound shear flow », *Physics of Fluids*, 2011.