



HAL
open science

Quorum sensing dans des assemblées de particules actives synthétiques : Séparation de phase induite par la motilité

Thibault Lefranc

► To cite this version:

Thibault Lefranc. Quorum sensing dans des assemblées de particules actives synthétiques : Séparation de phase induite par la motilité. Matière Condensée [cond-mat]. Ecole normale supérieure de lyon - ENS LYON, 2023. Français. NNT : 2023ENSL0119 . tel-04510010

HAL Id: tel-04510010

<https://theses.hal.science/tel-04510010>

Submitted on 18 Mar 2024

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

en vue de l'obtention du grade de Docteur, délivré par
l'ÉCOLE NORMALE SUPERIEURE DE LYON

École Doctorale N°52
Physique et Astrophysique de Lyon

Discipline : Physique

Soutenue publiquement le 18/12/2023, par :

Thibault Lefranc

Quorum sensing dans des assemblées de particules actives synthétiques : Séparation de phase induite par la motilité

Devant le jury composé de :

LEOCMACH, Mathieu	Chargé de recherche Université Claude Bernard Lyon 1	Rapporteur
PONTANI, Léa-Laetitia	Chargée de recherche Sorbonne Université	Rapporteuse
KELLAY, Hamid	Professeur Université de Bordeaux	Examineur
NARDINI, Cesare	Chercheur CEA	Examineur
RAFAI, Salima	Directrice de recherche CEA	Examinatrice
BARTOLO, Denis	Professeur ENS de Lyon	Directeur de thèse

Laboratoire de Physique
46 allée d'Italie
69364 Lyon cedex

École doctorale PHAST 52
Bâtiment Paul Dirac
4 rue Enrico Fermi
69622 Villeurbanne

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury d'avoir accepté de relire ces travaux de thèse et de les évaluer lors de la soutenance orale. Je tiens en particulier à remercier les rapporteurs qui ont autorisé la soutenance de mes travaux de thèse à la lecture de ce manuscrit qui ne reflète entièrement pas la qualité des travaux et de la soutenance qui a été permise. Enfin je remercie chaleureusement M. Hamid Kellay qui a accepté de présider ce jury de thèse (et qui a donc reçu ma prestation de serment, nouvellement instaurée).

Je tiens à remercier Denis qui, s'il a souligné ma résilience lors de la soutenance de thèse, est surtout celui qui a fait part d'une grande patience avec moi face aux difficultés rencontrées lors de cette thèse. Merci de m'avoir accepté (à plusieurs reprises) dans ton équipe, pour démarrer un nouveau projet de recherche à l'issue plus qu'incertaine lors du démarrage.

Merci au Laboratoire de Physique pour l'accueil et le cadre de travail chaleureux, merci à tous les doctorantes et doctorants que j'ai pu croiser lors de ces trois ans et demi, que ce soit pour les barbecues, le séminaire du labo ou les nombreuses discussions autour d'un café sur la passerelle.

Un immense merci à toute la Bartoloteam, de l'équipe qui m'a accueillie : Delphine, Marine, Marcelo, Amélie, et qui m'a convaincu de rejoindre ce formidable cadre de recherche sur la matière active ; jusqu'à celle qui m'a vue quitter le laboratoire : Stéphane, Alexis, François, Benjamin, Camille, Romane, les stagiaires que j'oublie... Je suis sûr qu'on trouvera le temps de le faire un jour ce team building ! Et Camille et Romane, je peux vous assurer que l'ambiance en

Remerciements

salle de manip était tout sauf délétère.

Merci à MM. Texeira, Gillois et Naulet, professeurs de physique-chimie rencontrés depuis le lycée et qui m'ont donné le goût de cette discipline. C'est à eux que je dois mon goût pour la recherche.

A tous mes amis hors du labo : la Dream Team, la Guille de bois, je vous dit chapeau, pour avoir entendu un nombre incalculable de fois mon sujet de thèse sans jamais rien y comprendre mais en s'y intéressant tout de même. Maël, Mathilde, Josphe, Maÿlis, Pierre-Marie, Julie, Sam, Mélisse, Sglaine, Paulette, Bernigaudor, un immense et infini merci ! Sans vous je n'y serais probablement pas arrivé, vous m'avez soutenu, encouragé, supporté malgré mes horaires parfois(souvent) étranges et mes recherches qui prennent plus de place que la vie de coloc.

Pour terminer, je voudrais remercier ma famille. Mes 3 petites sœurs préférées, je vous aime et vous remercie pour les moments que nous avons partagés au cours de ces 3 ans et demi, ces moments ont toujours été les bienvenus pour trouver une respiration. Bravo Mathilde de relever le défi de la thèse à ton tour ! Enfin je tiens à dire à mes parents combien je les aime. Sans eux, je ne serai probablement pas là où j'en suis actuellement, je n'aurai sûrement pas pris les décisions qui m'ont menées jusqu'à la rédaction de ce manuscrit (notamment une histoire d'APB) et je n'aurai pas su garder le cap pendant aussi longtemps.

A mes grands-parents

Table des matières

1	Matière active et séparation de phase	1
1.1	Les foules, prémices de la matière active	1
1.2	Des grands espaces au laboratoire	3
1.2.1	Matière active synthétique	3
1.2.2	Matière active naturelle et quorum sensing	5
1.3	Séparation de phase : concepts et outils	7
1.3.1	A l'équilibre	8
1.3.2	Hors équilibre : MIPS	12
1.4	Objectifs et organisation de la thèse	18
2	Motorisation de particules actives bistables	21
2.1	Approche qualitative - Particule isotrope	22
2.2	Approche quantitative - Particule anisotrope	23
2.2.1	Conservation de la charge - Calcul du dipôle	25
2.2.2	Équilibre mécanique - Positions d'équilibre et stabilité	28
2.3	Réalisation expérimentale de bâtonnets de Quincke individuels	32
3	Méthodes expérimentales	35
3.1	Fabrication des bâtonnets	35
3.1.1	Bâtonnets colloïdaux	35
3.1.2	Bâtonnets millimétriques	38
3.2	Dispositif expérimental	39

TABLE DES MATIÈRES

3.2.1	Construction des chambres expérimentales appropriées	39
3.2.2	Une histoire d'échange de solvants	41
3.3	Acquisition et analyse des données	42
3.3.1	Acquisition d'images	42
3.3.2	Analyse des images	44
4	Séparation de phase	49
4.1	Construction du diagramme de coexistence des phases	50
4.2	Étude de la transition de phase : nucléation & hystérèse	54
4.3	Une transition de phase induite par la motilité?	58
	Conclusion	61
	Bibliographie	72

CHAPITRE 1

Matière active et séparation de phase

1.1 Les foules, prémices de la matière active

On trouve dans la nature de nombreux exemples d'organisation collective, avec des espèces et des tailles d'organisation très variables. On a par exemple des essaims de criquets pouvant atteindre le kilomètre ou des bancs de poissons de l'ordre de quelques mètres, comme illustré dans la figure 1.1. Si l'on considère une nuée d'étourneaux, on peut remarquer l'absence de meneur. Pourtant la nuée s'organise et forme des volutes. Les oiseaux volent dans des directions similaires à celles de leur voisins et ne se percutent pas. On peut également prendre l'exemple de foules humaines, dans lesquelles on observera la mise en place de files de circulation [1]. Comment expliquer les phénomènes observés à une échelle plus grande que celle des individus? Comment expliquer avec quelques ingrédients simples ce mouvement collectif?

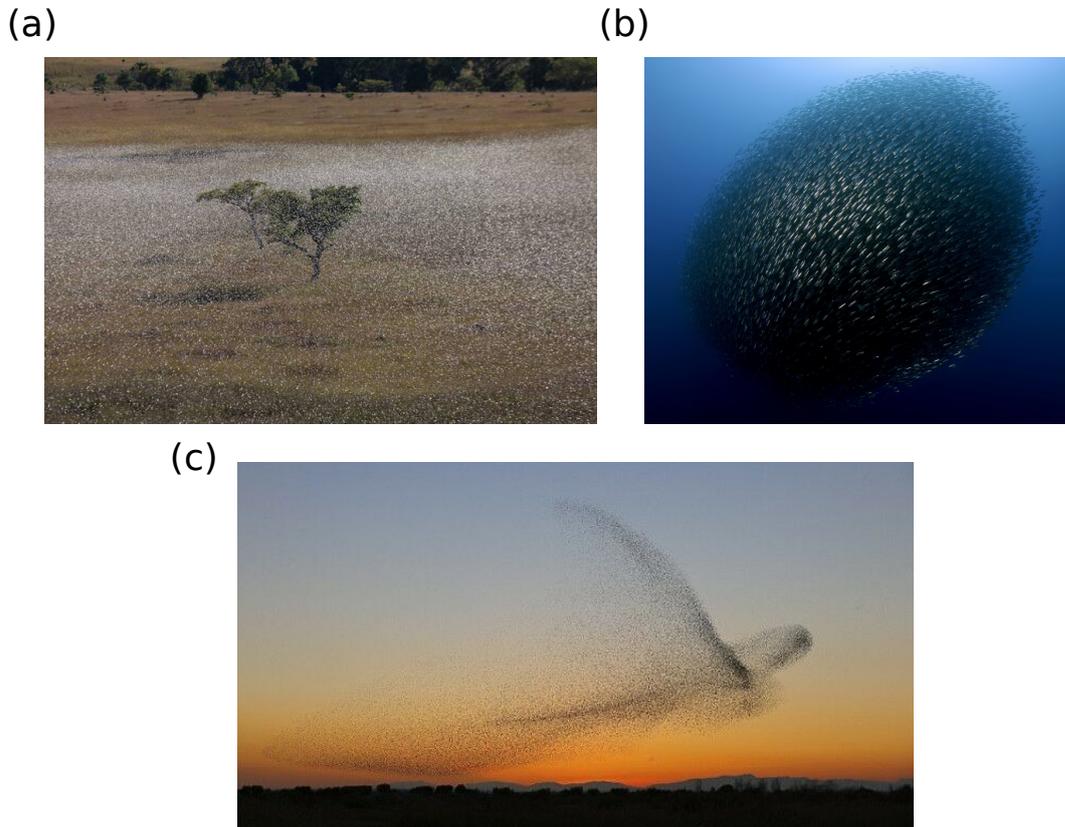


Figure 1.1 – Matière active naturelle à l'échelle du mètre : a) Essaim de criquet (crédits FAO/Yasuyoshi Chiba), b) Banc de sardines, c) Nuée d'étourneaux (crédits Daniel Biber)

Du point de vue du physicien, l'émergence de comportements collectifs à longue portée n'est pas nouvelle, avec par exemple les matériaux ferromagnétiques dont l'aimantation globale s'appuie sur les interactions locales d'aimantation. C'est en cherchant à mettre en évidence ces phénomènes dans les milieux avec des interactions biologiques il y a une trentaine d'années que T. Vicsek ainsi que J. Toner et Y. Tu ont initié le domaine de la matière active [2,3]. La *matière active* est définie comme une assemblée d'entités autonomes capables à leur échelle de convertir en mouvement l'énergie disponible dans leur environnement [4]. On peut classer la matière active en deux catégories : la première est la matière active dite *sèche*, en anglais *dry active matter*, où les particules s'appuient sur un substrat pour avancer. La quantité de mouvement n'est pas conservée à cause de ces interactions avec le substrat. La seconde est la matière active dite *humide* ou *wet active matter* en anglais.

Dans ce cas, les particules sont entourées par un fluide et subissent des interactions hydrodynamiques. La quantité de mouvement est alors conservée par le biais de ces interactions [4]. Par la suite, les physiciens de la matière active ont cherché à comprendre les propriétés de ces matériaux hors équilibre à l'aide des outils à leur disposition. Dans la suite de ce chapitre, je présente quelques outils pour l'étude de la matière active, notamment à une échelle réduite.

1.2 Des grands espaces au laboratoire

Un matériau actif tel qu'un banc de poisson ou une foule humaine n'est pas facilement reproduit et contrôlé en laboratoire [2,3], ou alors le nombre d'individus reste limité [5]. Pour observer des matériaux actifs calibrés et adaptés à des tailles de laboratoire raisonnables, les chercheurs ont développés ou se sont appuyés sur la matière active dont les composants font quelques millimètres voire quelques microns. A ces échelles, on peut distinguer deux types de matière active : la matière active synthétique, purement produite en laboratoire ; et la matière active d'origine naturelle.

1.2.1 Matière active synthétique

Pour constituer de la matière active en laboratoire, il faut choisir une brique élémentaire, un élément de base, puis motoriser cette particule. On pourra par exemple prendre un disque en plastique de quelques millimètres de diamètre dont la géométrie lui permet d'être motorisé par les vibrations du support sur lequel il se trouve [6], ou bien on le motorisera par un flux d'air [7]. A l'échelle colloïdale, c'est-à-dire pour des particules de quelques microns, on peut par exemple prendre une goutte au sein d'une émulsion, qui sera motorisé par des effets de tension de surface [8–10], une sphère à deux faces (particule Janus) que l'on motorise par des effets électrocinétiques [11] ou physico-chimiques [12–14], ou encore des billes de polystyrène motorisées par une instabilité électrohydrodynamique (l'effet Quincke) [15–17]. Ces différents types de matière active sont

illustrés dans la figure 1.2, et on peut noter qu'une organisation à grande échelle apparaît dans chaque cas : écoulement, formation d'un cristal, formation de clusters,...

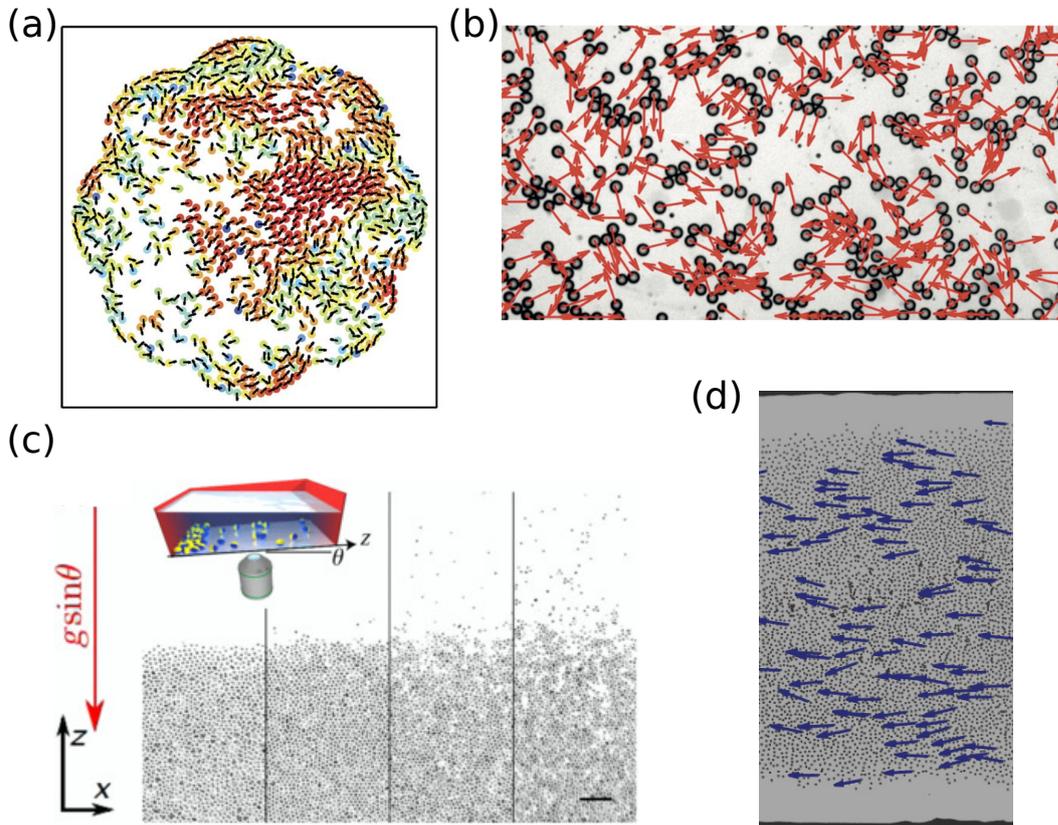


Figure 1.2 – Organisation au sein de la matière active synthétique : a) Disques vibrés formant des zones d'écoulement cohérent [6]. La fleur fait 80 mm de rayon. b) Clusters de gouttelettes dans émulsion active [8], les gouttes font environ 80 μm de diamètre. c) Particules Janus activées chimiquement. L'activité augmente vers la gauche, et on note que les particules explorent une zone de plus en plus grande [14]. La barre d'échelle mesure 20 μm . d) Écoulement spontané de rouleurs de Quincke [15]. Tandis qu'à l'état dilué les rouleurs se déplacent dans des directions aléatoires, lorsque la densité augmente, les vitesses des rouleurs s'alignent. L'image fait environ 150 μm de large.

Dans tous ces exemples, on peut noter que l'activité des particules est très peu impactée par leur environnement. En effet, pour chacun des exemples, la vitesse des particules est dictée par les propriétés individuelles de ces particules, que ces propriétés soient géométriques, chimiques ou physiques. Et les

particules sont incapables de communiquer entre elles, leur degré d'activité ne s'adapte pas à leur environnement.

1.2.2 Matière active naturelle et quorum sensing

Certains chercheurs, plutôt que de construire *ex nihilo* de la matière active ont préféré s'appuyer sur des éléments naturels. Comme nous l'avons vu dans le début de cette introduction, la nature est en effet l'inspiratrice de ce domaine. A l'échelle du laboratoire, les exemples de matière active auxquels on peut penser sont les tissus ou assemblages de cellules [18–20], les colonies de bactéries [21,22], ou encore des microtubules [23] ou des filaments d'actine [24] rendus mobiles par des moteurs moléculaires. La première chose que l'on peut noter en regardant ces exemples sur la figure 1.3, c'est que les particules sont anisotropes, c'est-à-dire qu'il est possible de définir l'orientation des particules. Au contraire, sur les exemples de matière active synthétique cités dans le paragraphe précédent, tels que les particules Janus ou les disques vibrés, on dira que les particules sont isotropes. En effet, une sphère ou un disque n'a pas d'orientation privilégiée. Que se passe-t-il si l'on utilise des bâtonnets plutôt que des sphères avec les moyens de motorisation évoqués dans le paragraphe précédent ?

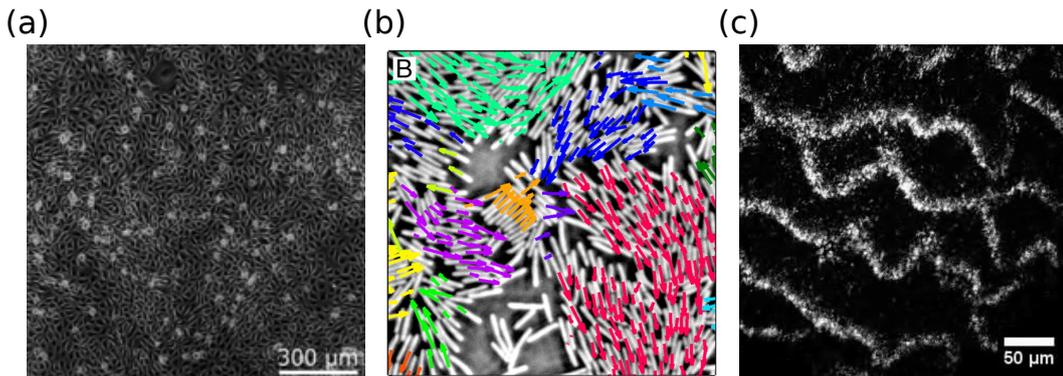


Figure 1.3 – Matière active colloïdale naturelle : a) Cellules épithéliales [20]. b) Colonie de bactéries [21]. L'image fait 60 μm de large. c) Filaments d'actine. On note la formation de vagues de densité [24].

Lorsqu'on étudie des particules anisotropes dont la direction peut être dé-

finie, assez naturellement se pose la question des variations de cette direction à l'échelle de l'assemblée de particules. Un certain nombre de travaux utilisent ainsi les outils appliqués aux cristaux liquides pour étudier l'ordre orientationnel des particules, la manière dont leur direction s'organise ou non, et comment cet arrangement est modifié par l'activité des particules. On observe ainsi des phases dites nématiques actives [23], caractérisées par une conservation à moyenne échelle de l'orientation malgré l'écoulement spontané de la matière (voir figure 1.4). Cette ordre orientationnel est conservé sur des zones dépassant une taille typique supérieure à dix fois celle des particules.

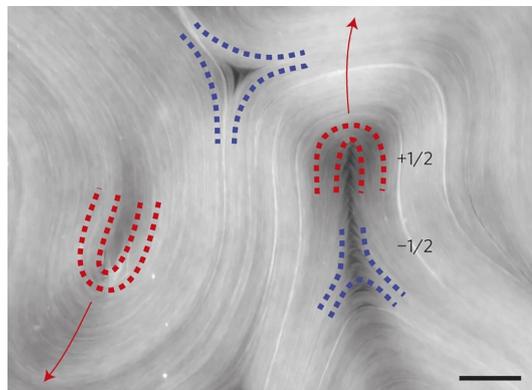


Figure 1.4 – Phase nématique active formée par des microtubules mis en mouvement par des moteurs moléculaires. Les défauts topologiques indiqués en couleur se déplacent sous l'effet de l'écoulement spontané des particules actives [23]. La barre d'échelle mesure 50 μm .

De plus, si l'on s'intéresse notamment au cas des bactéries, on notera qu'elles sont capables de communiquer entre elles. Ainsi les bactéries "sentent" leurs voisines et s'arrêtent lorsqu'elles sont trop nombreuses. On parle de détection du quorum ou *quorum sensing* en anglais [25]. Ainsi leur activité dépend de leur environnement. En particulier, des bactéries comme *E. coli* [26, 27] ou *Myxococcus xanthus* [28] sont caractérisées par un comportement alternant entre déplacement rectiligne (*run* en anglais) à vitesse v et des moments de réorientation statiques (*tumble* en anglais) de durée τ illustrés sur la figure 1.5a. On parle de particules *run & tumble* (RTP). La trajectoire est dessinée sur la figure 1.5b. Les bactéries ajustent leur vitesse de course et leur temps de réorientation en fonction du nombre de bactéries qui les entourent en communiquant avec des marqueurs biochimiques [27]. On a donc une activité qui dépend

de l'environnement de la particule. Comme les bactéries s'arrêtent lorsqu'elles ont trop de voisins, des zones de forte densité avec des bactéries en réorientation se forment, séparées par des zones de faible densité à forte mobilité. On peut voir ces variations de densité sur la figure 1.5c. Les foules humaines sont un autre exemple de quorum sensing, à une échelle différente. En effet, nous adaptons notre vitesse en fonction des personnes qui nous entourent et de la densité de piétons environnantes pour ne pas nous percuter [29].

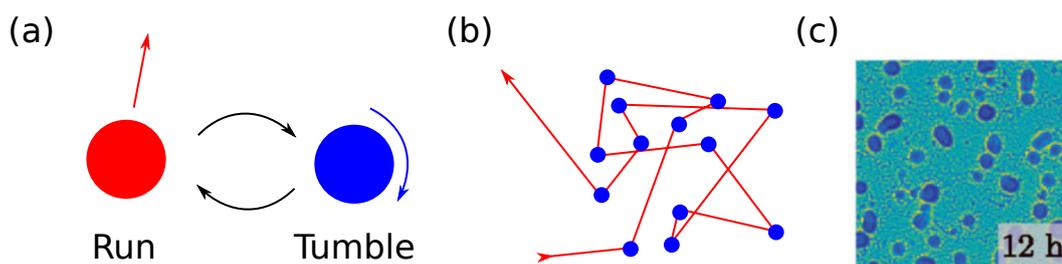


Figure 1.5 – a) Run & Tumble, la particule alterne entre des états où elle se déplace (Run) et des états statiques où elle se réoriente (Tumble). b) Trajectoire typique de RTP, c) Séparation de phase chez *Myxococcus xanthus* [28]. La couleur code pour la densité.

Les paramètres v et τ sont appelés paramètres de motilité, et sont des outils de mesure de l'activité. Il est possible de les calculer pour des particules actives synthétiques. La question est donc posée de savoir s'il est possible de reproduire de manière synthétique cet effet de détection du quorum. Est-il possible de créer de la matière active synthétique dont l'activité change avec l'environnement ? Et observe-t-on toujours ces variations de densité ?

1.3 Séparation de phase : concepts et outils

Par parler de ces variations de densité, un physicien peut parler de séparation de phase. Mais qu'est-ce qu'une séparation de phase ? Pour aborder aisément ce sujet dans la suite de cette thèse, et cerner plus clairement ce que nous cherchons à observer avec ces travaux, je vais faire ici un point rapide sur la séparation de phase.

Dans un premier temps j'aborderai la séparation de phase dans un système général assez simple dit "à l'équilibre", puis dans un second temps nous nous intéresserons à une séparation de phase particulière dans les fluides actifs : la séparation de phase induite par la motilité ou *Motility Induced Phase Separation* (MIPS) en anglais.

1.3.1 A l'équilibre

On considère un matériau dit scalaire, c'est à dire caractérisé par un paramètre d'ordre ϕ dont la valeur est scalaire en tout point de l'espace. Un tel paramètre d'ordre peut par exemple être la densité. Lorsque le matériau est homogène, le paramètre d'ordre a la même valeur en tout point du matériau. Par exemple, l'eau à l'état liquide est une phase homogène, et sa densité est peu ou prou $1000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

Si des domaines où le paramètre d'ordre varie brutalement apparaissent, on parle de séparation de phase. Cette séparation de phase peut notamment avoir lieu lorsqu'on change le paramètre de contrôle T de notre matériau (la température par exemple). Dans le cas de la densité, on aura une phase de faible densité, et une phase de densité élevée [30]. Pour reprendre notre exemple, l'évaporation de l'eau avec l'apparition de vapeur (de l'eau sous forme gazeuse) est une séparation de phase. L'eau en phase liquide a une densité sensiblement différente de celle de l'eau gazeuse, et la frontière entre gaz et liquide est marquée (on peut observer des bulles, c'est-à-dire des poches de gaz au sein de la phase liquide). Un autre exemple de séparation de phase est la démixtion de deux espèces, dans un alliage métallique par exemple. Dans ce cas, le paramètre d'ordre est la quantité d'une des espèces métalliques concernées. On pourrait encore citer la séparation entre deux liquides miscibles.

Pour expliquer ce phénomène, il faut regarder du côté de la densité d'énergie libre dans le matériau $f(\phi, T)$. Pour une certaine valeur du paramètre de contrôle, la densité d'énergie libre est convexe, représentée sur la figure 1.6a. Si on observe localement une fluctuation du paramètre d'ordre $\phi_- < \phi_0$ autour du paramètre d'ordre moyen ϕ_0 , on observe une fluctuation opposée $\phi_+ > \phi_0$

par conservation de ce paramètre d'ordre. A cause de la convexité de la densité d'énergie libre, la densité d'énergie libre moyenne $(f(\phi_-) + f(\phi_+))/2$ est plus grande que celle de la valeur d'origine $f(\phi_0)$. Cette fluctuation est donc instable et le matériau reste à paramètre d'ordre constant. Comme un seul paramètre d'ordre est stable, le matériau reste homogène. En changeant le paramètre de contrôle, on peut obtenir une densité d'énergie libre avec deux parties convexes. Et donc la densité d'énergie libre a également une partie concave. Dans ce cas, certaines valeurs du paramètre d'ordre deviennent instables. En effet, la densité d'énergie libre moyenne à la suite d'une fluctuation est inférieure à celle du paramètre d'ordre de départ. Cette fluctuation est donc énergétiquement plus favorable que de garder un milieu homogène. Si les deux nouvelles valeurs du paramètre d'ordre sont elles-mêmes toujours dans la zone concave de l'énergie libre, alors elles sont instables, et le paramètre d'ordre varie pour atteindre des valeurs stables. On a alors une variation brutale du paramètre d'ordre dans le matériau, ou séparation de phase.

Pour expliquer les choses plus en détail, s'il y a deux convexités dans le profil de la densité d'énergie libre, cela signifie que certaines valeurs du paramètre d'ordre sont localement stables (on dit *métastable*) de la même manière que dans le cas de la convexité unique. Cependant, il est possible qu'une combinaison de paramètres d'ordre plus dispersée soit plus favorable énergétiquement comme illustré sur la figure 1.6b avec le paramètre d'ordre ϕ_1 . Le paramètre d'ordre dans chacune des phases ainsi formées est donné par la tangente commune. Il s'agit des paramètres ϕ_a et ϕ_b sur la figure 1.6b. La proportion de chacune des phases est donnée par la règle du levier sur le segment ainsi tracé. Pour résumer, les très faibles et très forts paramètres d'ordre sont stables, les valeurs intermédiaires de paramètre d'ordre correspondent à une phase instable, et entre les deux on obtient de la métastabilité. En représentant ces comportements en fonction du paramètre d'ordre et du paramètre de contrôle, on obtient le diagramme de phase représenté sur la figure 1.6c. La ligne reliant A, C et B est appelé courbe de coexistence ou ligne binodale, la ligne reliant D, C et E est appelé limite de stabilité ou ligne spinodale.

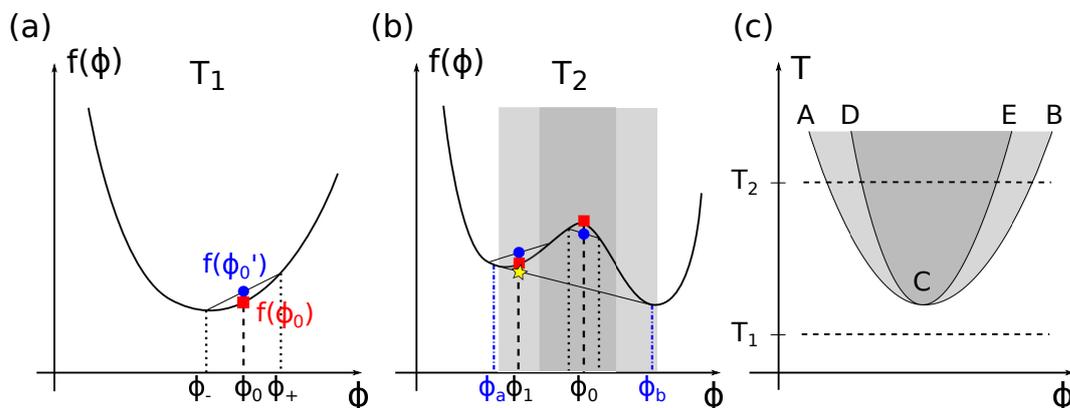


Figure 1.6 – Séparation de phase pour un paramètre d'ordre scalaire ϕ . a) Densité d'énergie libre $f(\phi)$ pour une phase homogène. Lorsque une variation du paramètre d'ordre local ϕ apparaît, sa densité d'énergie moyenne $f(\phi'_0)$ (rond bleu) est plus élevée que sa valeur initiale (carré rouge). Cette variation est défavorable. b) Densité d'énergie libre avec possibilité de séparation de phase. Pour le paramètre d'ordre ϕ_0 , une variation du paramètre d'ordre est favorable, il y a séparation de phase (zone gris foncé). Pour ϕ_1 , une petite variation n'est pas favorable, mais une grande variation permet d'atteindre une densité d'énergie libre moyenne plus basse (étoile jaune). ϕ_a et ϕ_b sont les paramètres d'ordre de chacune des phases ainsi formées. Une phase à densité ϕ_1 est dite métastable (gris clair). c) Diagramme de phase. La zone gris foncée est la zone de coexistence des phases, la zone gris clair la zone de métastabilité. La ligne ACB est la ligne binodale, et la ligne DCE la ligne spinodale (d'après [30]).

Pour étudier la séparation de phase, il est possible de s'intéresser à la cinétique de la séparation de phase. Celle-ci peut être découpée en 2 étapes [30]. La première est la fluctuation du paramètre d'ordre. On part d'un état homogène avec le même paramètre d'ordre en tout point. Par des effets, notamment de diffusion thermique, le paramètre d'ordre subit localement de légères fluctuations. Dès que ce paramètre d'ordre global est instable par changement du paramètre de contrôle, les fluctuations le sont également, et vont être amplifiées pour conduire le système vers un état plus stable. Le paramètre d'ordre va continuer de changer jusqu'à atteindre en tout point une valeur locale stable. Dans un deuxième temps, une fois que chaque phase a atteint un paramètre d'ordre stable, les domaines peuvent encore changer de taille et de forme. C'est l'étape du mûrissement ou *coarsening* en anglais.

Pour la première étape de la séparation de phase, plusieurs processus sont possible selon la vitesse à laquelle le changement dans le diagramme de phase s'est effectué et le point d'arrivée dans ce diagramme. Si le changement est brutal et que la ligne spinodale est franchie, des petites zones où le paramètre d'ordre est stable vont apparaître immédiatement, créant une forte variation locale du paramètre d'ordre. On parle de *décomposition spinodale*, illustrée en haut de la figure 1.7. Au contraire, si le changement est lent, la phase devient métastable. Localement, une fluctuation peut être suffisamment forte pour créer un petit domaine où le paramètre d'ordre atteint une valeur plus stable. Au delà d'une certaine taille critique, ce domaine continue à grossir lors de la phase de mûrissement. Au contraire, les domaines plus petits que cette taille critique finissent par disparaître. On parle de *nucléation et croissance*. La séparation de phase se fait de manière localisée. Elle n'est pas homogène comme pour la décomposition spinodale.

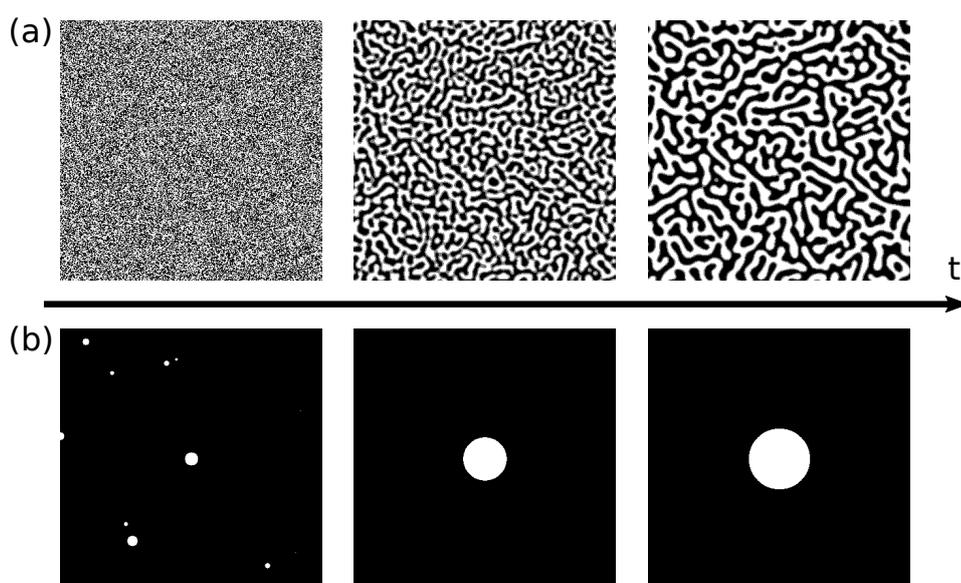


Figure 1.7 – Illustration de 2 processus de séparation de phase : a) Décomposition spinodale, b) Nucléation et croissance.

Pour rappel, le paramètre d'ordre dans chacune des phases est donné par la règle de la tangente commune, représentée sur la courbe de la figure 1.6b. Et la quantité de chaque phase est donnée par une règle du levier sur cette même droite.

Lors du mûrissement, la diffusion et la convection sont deux phénomènes importants à prendre en compte pour expliquer le changement de taille des domaines [30, 31]. D'une part, par la diffusion des particules, les domaines de petites tailles "fondent" au profit des domaines plus grands. Dans ce cas, on observera pour un paramètre d'ordre conservé globalement une loi de croissance temporelle de la taille typique des domaines en $t^{1/3}$. D'autre part, sous l'effet de la convection des domaines, c'est-à-dire un mouvement des domaines eux-mêmes, ceux-ci peuvent se déformer, puis fusionner lorsqu'ils se rencontrent. Ce phénomène est plus rapide que la diffusion, et on aura dans ce cas une taille des domaines croissant comme t . Dans les deux cas, puisque des domaines sont définis par des variations brutales du paramètre d'ordre, un facteur énergétique supplémentaire intervient pour maintenir cette interface. On parle de *tension de surface*. Dans le cas de la nucléation, cette tension de surface permet d'expliquer pourquoi seuls les domaines dont la taille est supérieure à une taille critique croissent. En-dessous de cette taille critique, l'énergie générée par l'interface et sa courbure n'est pas favorable. Au niveau de l'interface, puisque le paramètre d'ordre varie fortement d'un domaine à l'autre, le gradient du paramètre d'ordre est particulièrement élevé au niveau de l'interface. Ainsi cette tension de surface fait intervenir dans la dynamique de la séparation de phase des gradients du paramètre d'ordre.

1.3.2 Hors équilibre : MIPS

Théorie

Comme dans un matériau actif l'énergie est dissipée au niveau des constituants élémentaires, ceux-ci suivent des trajectoires irréversibles. Ainsi, un matériau actif ne peut pas atteindre un point d'équilibre thermodynamique, état réversible [32]. Par conséquent, dans les systèmes hors équilibre, il est plus difficile de définir un paramètre de contrôle et une énergie libre. Existe-t-il tout de même des séparations de phase dans des matériaux actifs ? De manière générale, pour le physicien, comment est-il possible de caractériser la répartition des particules actives dans le matériau ? Deux ingrédients permettent d'expliquer

qualitativement une possible séparation de phase dans les matériaux actifs. Ici notre paramètre d'ordre sera la densité, le nombre de particules par unité de volume ou de surface, selon la dimension que l'on considère. Le premier ingrédient est l'accumulation de particules aux endroits de faible vitesse. Le second est la diminution de la vitesse avec la densité. Ainsi les particules s'accumulent dans les zones les plus denses, c'est-à-dire où la vitesse est la plus faible, entraînant avec les bonnes conditions une séparation de phase. Il est en effet nécessaire que la variation de la vitesse avec la densité soit suffisamment importante pour permettre de piéger les constituants dans les zones de forte densité, et créer des variations abruptes de densité.

Pour avoir une théorie plus approfondie de cette séparation de phase, il est intéressant de s'appuyer sur le cas des particules passives. En l'absence de champ extérieur, d'interactions et de source ou de puits de particules, la densité des particules ρ et leur flux \mathbf{J} sont donnée par les équations suivantes :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{J}, \quad (1.1)$$

$$\mathbf{J} = -D_t \nabla \rho . \quad (1.2)$$

D_t est le coefficient de diffusion par agitation thermique des particules.

Pour les particules actives, du fait de leur mobilité, la diffusion par agitation thermique joue un rôle moins important voire négligeable. Dès que les particules actives ont un temps (ou une longueur) de persistance de l'auto-propulsion fini, elles finissent par se réorienter et reproduisent ainsi à temps long des trajectoires dites de marches aléatoires [33]. En prenant également en compte la diffusion thermique standard, le coefficient de diffusion induite par la motilité s'écrit alors :

$$D = \frac{v^2 \tau}{d} + D_t , \quad (1.3)$$

où d est le nombre de dimensions du matériau. Dans un premier temps, le

dernier terme D_t est négligé.

Lorsqu'on cherche à réécrire l'équation 1.2 pour des particules actives, on obtient l'équation suivante [34] :

$$\mathbf{J} = -D\nabla\rho + \rho\nabla\left(\frac{\delta}{\delta\rho(\mathbf{r})}D([\rho], \mathbf{r})\right) + \mathbf{V}([\rho], \mathbf{r})\rho + \sqrt{2D\rho}\mathbf{\Lambda}, \quad (1.4)$$

avec

$$\frac{\mathbf{V}([\rho], \mathbf{r})}{D([\rho], \mathbf{r})} = -\nabla \ln v([\rho], \mathbf{r}), \quad (1.5)$$

et $\mathbf{\Lambda}$ est un bruit blanc vectoriel. La quantité $\mathbf{V}([\rho], \mathbf{r})$ est appelée vitesse de dérive. Les paramètres D et \mathbf{V} sont les paramètres de motilité du matériau actif. Le second terme de droite dans l'équation 1.4 est négligeable dans la plupart des cas. En dérivant l'équation de Fokker-Planck correspondante pour la probabilité du champ de densité, on trouve un état de pseudo-équilibre sous la condition d'intégrabilité suivante :

$$\frac{\mathbf{V}([\rho], \mathbf{r})}{D([\rho], \mathbf{r})} = -\frac{1}{k_B T} \nabla \frac{\delta \mathcal{F}_{\text{ex}}}{\delta \rho}. \quad (1.6)$$

D'après l'équation 1.5, cela signifie que $\ln v([\rho], \mathbf{r})$ est la dérivée fonctionnelle de \mathcal{F}_{ex} . En particulier, cette condition est vérifiée avec l'hypothèse de localité parfaite (la vitesse v ne dépend que de ρ et d'aucun de ses gradients) [26]. On a alors $\mathcal{F}_{\text{ex}} = \int_0^\rho \ln v(s) ds$. Pour faire le parallèle avec des particules passives, il est donc possible de définir une densité d'énergie libre effective :

$$f(\rho) = \rho(\ln \rho - 1) + \int_0^\rho \ln v(s) ds. \quad (1.7)$$

La premier terme correspond à la contribution de l'entropie, et le second correspond dans le cas de particules passives à celle d'un Hamiltonien avec des interactions.

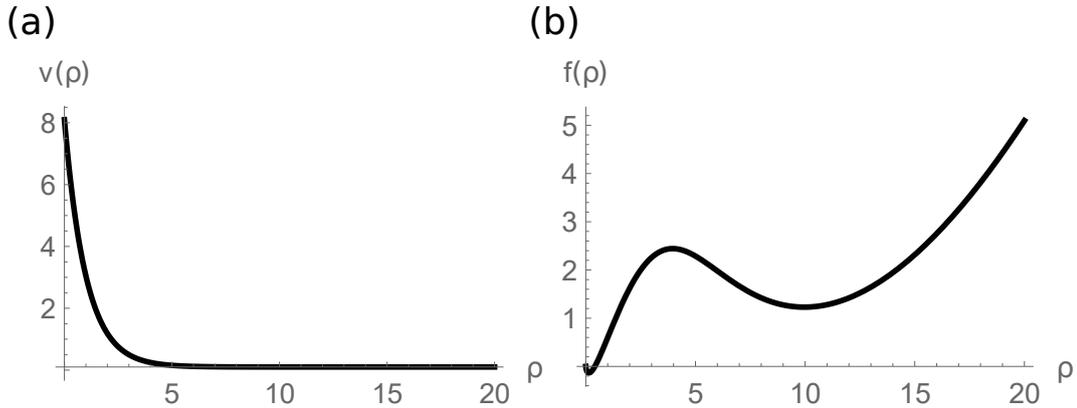


Figure 1.8 – *Motility Induced Phase Separation*. a) Profil de vitesse en fonction de la densité $v(\rho) = v_0 + v_1 e^{-\frac{\rho}{\rho_\star}}$, avec $v_0 = 0.1$, $v_1 = 8$ et $\rho_\star = 1.0$, b) Densité d'énergie libre effective correspondante. On note bien la concavité de cette densité effective.

Cette densité d'énergie libre effective est tracée à droite sur la figure 1.8 pour le profil de vitesse tracé à gauche. On note tout de suite que cette énergie libre effective comporte une concavité, synonyme d'une possible séparation de phase comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent. La condition pour avoir cette concavité est $f''(\rho) < 0$. Cette condition est équivalente à $v'(\rho) < -\frac{v}{\rho}$. Autrement dit, pour une densité donnée, la variation de la vitesse doit être suffisamment forte par rapport à la vitesse pour piéger les particules, comme dit au début de ce paragraphe.

Dans le cas évoqué jusque-là (en absence de diffusion par agitation thermique), dès lors que le profil de vitesse est adéquat, c'est-à-dire les interactions entre particules, la séparation de phase est possible. En revanche, il n'y a aucun paramètre de contrôle de cette séparation de phase. Ainsi il n'est pas possible de tracer de diagramme de phase comme dans le cas passif. Si l'on prend en compte la diffusion par agitation thermique, la condition d'intégrabilité est modifiée. La densité d'énergie libre effective est également modifiée, et dépend de ce paramètre D_t . Par conséquent, la condition de concavité l'est également, et elle n'est valide qu'en-deçà d'une valeur critique du coefficient de diffusion D_t , ou au-delà d'une valeur critique de la vitesse typique des particules v_0 [32]. Ainsi, l'activité, mesurée avec D_t ou v_0 , sert d'équivalent au paramètre de contrôle du cas passif, et permet de tracer un diagramme de

phase de la matière active.

Pour le moment, l'analyse qui a été faite ne donne aucune information sur la taille ou l'évolution des domaines. La seule information disponible est l'existence de la séparation de phase, et à l'aide de la méthode du levier, il est éventuellement possible de déterminer le volume total de chacune des phases. Ce manque d'information sur la dynamique des phases vient de l'hypothèse de localisation parfaite. En effet, avec cette hypothèse, la vitesse ne dépend pas des gradients de densité. Ainsi ceux-ci n'apparaissent pas dans l'énergie libre effective, et donc la création d'interfaces n'a pas d'incidence sur la séparation de phase. Ainsi la comparaison avec les systèmes passifs s'arrête ici. Il est tout de même possible d'ajouter des termes de gradients dans la densité d'énergie libre effective, mais ces termes ne respectent pas forcément la condition d'intégrabilité 1.6. Il est possible d'utiliser un 'modèle intégrable le plus proche', et on retrouve une loi de croissance des domaines en $t^{1/3}$ [35], laissant penser au caractère diffusif de cette dynamique comme pour le cas passif.

Expériences et simulations

Dans leur article, J. Stenhammar *et al.* [35] utilisent en plus d'une approche analytique des simulations numériques de particules browniennes actives (*Active Brownian Particles* - ABP en anglais) pour étudier cette séparation de phase. Un aperçu de ces simulations est visible sur la figure 1.9. On peut également voir le résultat de la résolution numérique du problème avec l'hypothèse d'un milieu continu. Ils trouvent un exposant cohérent avec la théorie, proche de 1/3. Cependant ces coefficients dépendent de la dimensionnalité. Avec ces simulations, il est possible de retrouver les lignes binodales et spinodales du diagramme de phase. A. Patch *et al.* ont utilisé ce même modèle de particules pour étudier la cinétique de cette séparation de phase [36]. Des modèles de particules autres qu'ABP ont été utilisés pour étudier MIPS [32]. Les travaux de M. E. Cates et J. Tailleur [32] s'appuient par exemple sur des simulations faites avec des RTP en 1 dimension [26]. Puis les simulations se généralisent en 2 dimensions, et on retrouve la séparation de phase [37]. Il est ensuite possible de comparer les deux modèles [38], qui ont des comportements très similaires.

Ces deux modèles permettent de reproduire le comportement de particules à détection de quorum. Les simulations permettent également de comparer les particules à détections de quorum aux particules à interactions de paire, et de trouver un modèle unifié [39]. On peut enfin citer les travaux de F. Jose *et al.* [40] qui ont reproduit MIPS numériquement en simulant la détection de quorum pour les particules actives.

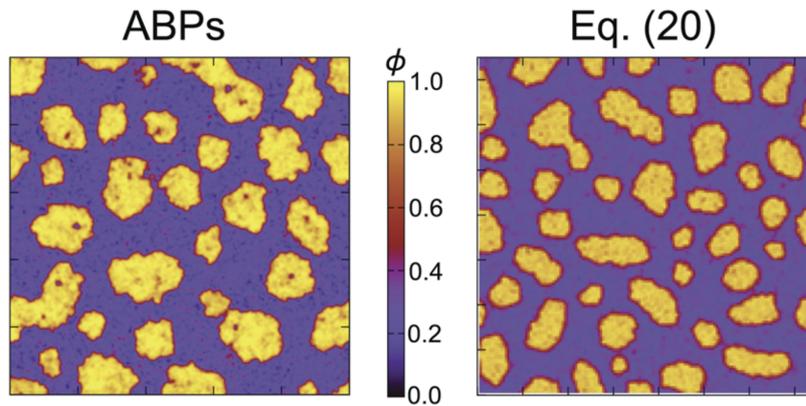


Figure 1.9 – Démonstrations numérique de MIPS [35]. A gauche, avec des ABP, les particules sont simulées individuellement, à droite résolution de l'équation continue correspondant à ce problème.

Les démonstrations expérimentales de MIPS sont peu nombreuses, notamment pour la matière active naturelle [27]. Pour la matière active synthétique, on retrouve MIPS pour différents types de motorisation : particules Janus électrophorétiques [41], rouleurs de Quincke [42], ou même sphères de silice dont les interactions sont explicitement contrôlées par un algorithme avec une boucle de rétroaction [43]. Certains de ses premiers exemples expérimentaux sont illustrés sur la figure 1.10. Cependant, le modèle de MIPS n'est que partiellement validé par ces expériences. Dans le cas des particules Janus, la séparation de phase est interrompue par la mise en mouvement des domaines statiques à cause de l'alignement des particules au sein des domaines. Dans le cas des rouleurs de Quincke, les phases arrêtées se propagent au sein du liquide polaire dans lequel elles se sont formées. Et dans le cas des sphères de silice, si l'accord avec MIPS est retrouvé, l'expérience nécessite l'intervention d'un opérateur extérieur, sous forme d'algorithme de rétroaction. Ainsi la séparation de phase n'est pas liée aux propriétés des particules elles-mêmes.

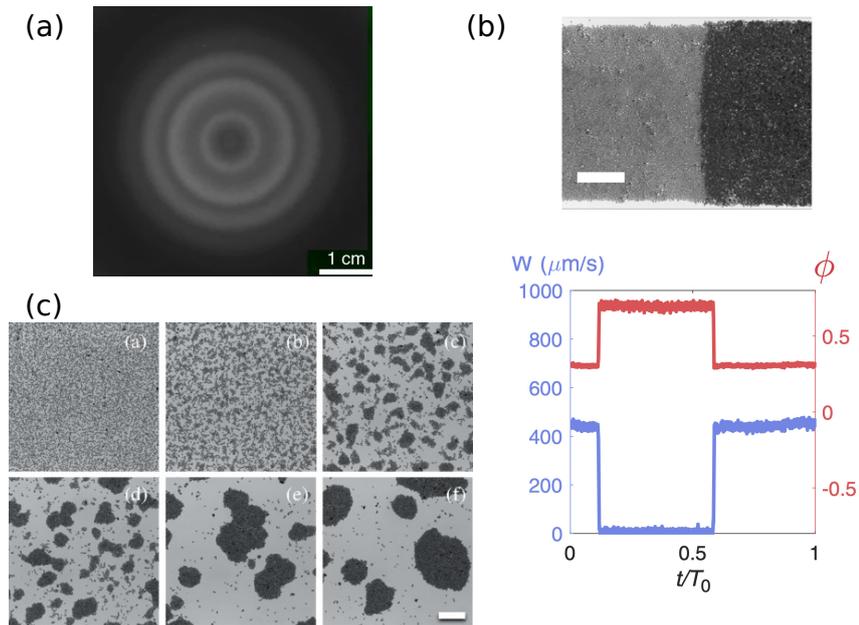


Figure 1.10 – Premières démonstrations expérimentales de MIPS. a) Quorum sensing par *E. Coli* par des marqueurs biochimiques [27], b) Transition entre écoulement polaire et bouchon avec des rouleurs de Quincke [42]. Sur le graphique en dessous, le flux de particule W et la densité ϕ sont représentés, et montrent bien la séparation de phase. c) Formation de clusters passifs chez des particules Janus [41].

1.4 Objectifs et organisation de la thèse

Dans les sections qui précèdent, nous avons eu une présentation de la matière active, permettant d'introduire l'objet de cette thèse, qui est l'étude de la séparation de phase dans un système de particules actives bistables. De manière plus spécifique, je souhaiterais avec ce manuscrit montrer comment j'ai développé un système artificiel exhibant un comportement de quorum sensing. Pour répondre à cette question, mes travaux de thèse seront présentés en plusieurs chapitres organisés comme suit :

Chapitre 1 : Motorisation de particules actives

J'utilise une approche théorique afin de montrer d'abord comment je motorise des particules pour les rendre actives, puis comment cette motorisation procure aux particules que j'utilise une bistabilité que j'ai exploité dans la suite de mes travaux. Pour être plus précis, je détaille l'électrorotation de Quincke pour des particules anisotropes.

Chapitre 2 : Méthodes expérimentales

Dans ce chapitre, j'aborde tous les aspects techniques qui ont permis de mettre en place les expériences permettant d'observer les phénomènes qui nous intéressent. Je présente une démarche qui va de la synthèse des particules colloïdales utilisées dans mes travaux à l'analyse des images capturées en passant par la mise en place du dispositif expérimental.

Chapitre 3 : Séparation de phase

Enfin dans ce chapitre je présente les résultats obtenus grâce aux expériences décrites dans le chapitre précédent, dont l'observation d'une séparation de phase, qui n'est pas sans rappeler la MIPS exposée dans la section précédente.

CHAPITRE 2

Motorisation de particules actives bistables

Comme nous l'avons vu en introduction, la matière active est constituée d'éléments motorisés à l'échelle individuelle. Dans ces travaux de thèse, la particule de base est un bâtonnet colloïdal. Et pour motoriser ces particules colloïdales, j'utilise l'effet Quincke [44], utilisé dans le groupe de Denis Bartolo depuis une dizaine d'année [15]. Dans une première partie, j'explique de manière qualitative cet effet Quincke, puis dans une seconde partie, j'utilise une approche quantitative pour démontrer cet effet dans un cas plus général. Enfin je montre une réalisation expérimentale de ces particules actives anisotropes.

2.1 Approche qualitative - Particule isotrope

On considère une particule isolante plongée dans un fluide (visqueux donc) diélectrique conducteur. Lorsqu'un champ électrique est appliqué, la particule va se polariser (comme illustré dans la figure 2.1). Ce dipôle est d'abord créé par la différence de permittivité diélectrique entre la particule et le milieu environnant. Puis, sous l'effet de ce champ électrique, les charges présentes dans le fluide vont s'accumuler à la surface de la particle. Sous les bonnes conditions, cette accumulation de charge en compensation de la polarisation naturelle de la particule produit un dipôle opposé au champ électrique. Ce dipôle est donc instable. Au delà d'une certaine valeur de champ électrique, la moindre perturbation du dipôle (par un déplacement des charges par exemple), résulte dans un couple électrodynamique exercé sur la particule. Ce couple met en rotation la particule, et est compensé par le frottement visqueux de la particule, lui permettant d'atteindre une vitesse de rotation typique, qui dépend des paramètres évoqués ici.

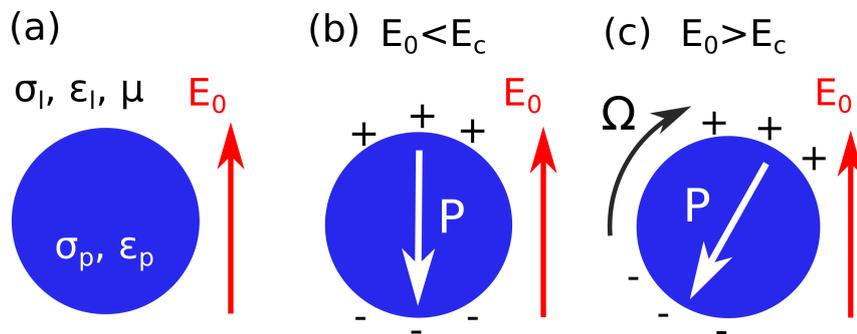


Figure 2.1 – Illustration de l'effet Quincke pour une sphère. a) Positionnement du problème. b) En-dessous d'une valeur seuil, un dipôle stable est formé. c) Au delà de la valeur seuil, ce dipôle est instable, et la particule se met à tourner.

Si une telle particule en rotation est en contact avec une surface, le mouvement de rotation est converti en déplacement rectiligne, et la vitesse de la particule est fixée par le champ électrique comme le montre la figure 2.2a. On parle de rouleurs de Quincke. La direction de la vitesse n'est pas imposée, ce qui est confirmé par la distribution des composantes de la vitesse 2.2b. On note que toutes les directions sont équiprobables, avec une vitesse typique donnée par le rayon de cette distribution. Cette vitesse dépend des paramètres du

fluide et de la particules, et son carré varie linéairement avec le carré de la valeur du champ électrique 2.2c.

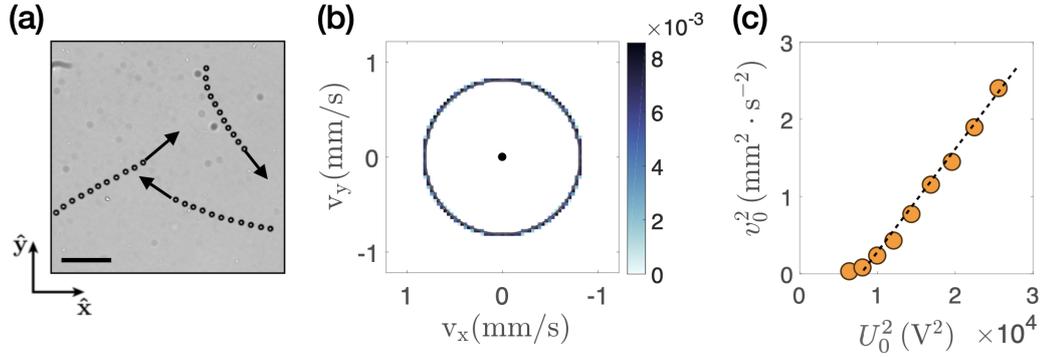


Figure 2.2 – a) Superposition d’images de rouleurs de Quincke en mouvement. La barre d’échelle mesure μm . b) Distribution des composantes de la vitesse pour des rouleurs de Quincke en phase diluée. c) Carré de la vitesse typique en fonction du carré du champ électrique. On retrouve la prédiction théorique de la vitesse de déplacement des rouleurs de Quincke. D’après la thèse d’A. Chardac [45]

2.2 Approche quantitative - Particule anisotrope

Pour expliquer ce phénomène de manière plus quantitative, considérons le cas plus général d’une particule ellipsoïdale de permittivité relative ϵ_p et de conductivité σ_p plongée dans un fluide de permittivité relative ϵ_1 , de conductivité σ_1 et de viscosité μ . La démonstration présentée ici s’appuie sur les travaux de Jones [46], Cēbers *et al.* [47], Dolinsky et Elperin [48] et Brosseau *et al.* [17]. Dans un premier temps, on calcule le dipôle porté par la particule, en utilisant les équations de Maxwell et la conservation de la charge. Puis le calcul du couple électrodynamique et du couple visqueux permet de trouver les positions d’équilibre de la particule et leur stabilité.

Mathématiquement, la surface de l'ellipsoïde est définie par

$$\frac{x_1^2}{a_1^2} + \frac{x_2^2}{a_2^2} + \frac{x_3^2}{a_3^2} = 1,$$

où x_1 , x_2 et x_3 sont les coordonnées cartésiennes dans le repère lié à l'ellipsoïde, avec ses axes de longueur $a_1 \geq a_2 \geq a_3$. On introduit les coordonnées ellipsoïdales ξ, η, ζ définies comme solutions de l'équation

$$\frac{x_1^2}{u + a_1^2} + \frac{x_2^2}{u + a_2^2} + \frac{x_3^2}{u + a_3^2} = 1,$$

avec $\xi \geq -a_1^2 \geq \eta \geq -a_2^2 \geq \zeta \geq -a_3^2$ [49]. Dans ce système de coordonnées, la surface de l'ellipsoïde est simplement définie par $\xi = 0$. On note x, y et z les coordonnées cartésiennes dans le référentiel du laboratoire. Une aide pour visualiser ces coordonnées est donnée sur la figure 2.3a.

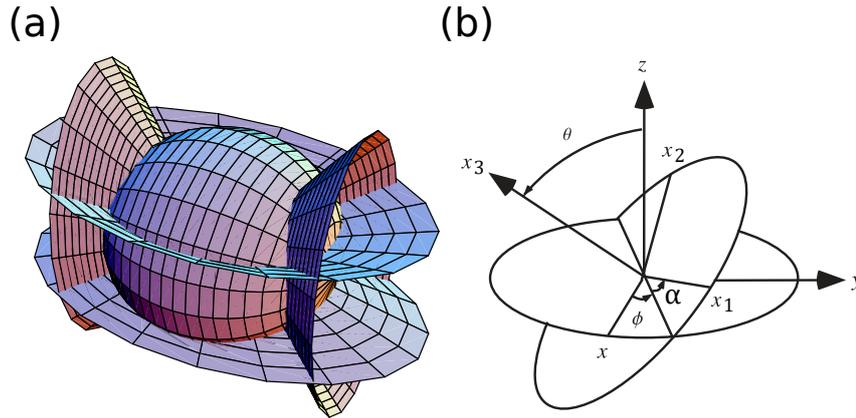


Figure 2.3 – a) Représentation de plans de coordonnées ellipsoïdales fixées. Chaque surface est un définie par une coordonnées ellipsoïdale fixée. Les ellipsoïdes (au centre) sont les surfaces à ξ fixé. b) Représentation des angles d'Euler associés au changement de repère x, y, z à x_1, x_2, x_3 .

L'électrorotation de Quincke repose sur 2 principes. Le premier est la conservation de la charge pour rééquilibrer la polarisation instantanée des milieux, et le second est l'équilibre mécanique entre le couple électrodynamique et le couple visqueux. Dans un premier temps, nous verrons comment s'établit le dipôle porté par la particule, puis nous analyserons la stabilité de la particule en tenant compte de la viscosité du fluide.

2.2.1 Conservation de la charge - Calcul du dipôle

Chacun des milieu considéré est électriquement neutre. Les seules charges qui vont apparaître sont donc liées à la discontinuité entre les deux milieux. Le dipôle porté par la particule est donné par l'intégrale sur la surface des charges :

$$\mathbf{P} = \oint \gamma_t d\mathbf{S}, \quad (2.1)$$

où $\gamma_t = \epsilon_0[\mathbf{E} \cdot \hat{\mathbf{n}}]$ est la densité surfacique de l'ensemble des charges de la particule. Il est donc nécessaire de déterminer le champ électrique \mathbf{E} à la surface de la particule. Pour cela, on suppose que ce champ électrique dérive d'un potentiel, et que la présence de la particule ajoute une perturbation au potentiel. Cette perturbation est proportionnelle au potentiel en absence de particule. De plus, on suppose que chaque composante du champ électrique dans le repère de la particule subit sa propre perturbation. En écrivant ces hypothèses en coordonnées ellipsoïdales, nous avons :

$$\phi = \sum_{i=1}^3 \phi_{0i} (1 + F_i(\xi, t)) = - \sum_{i=1}^3 E_{0i} x_i (1 + F_i(\xi, t)). \quad (2.2)$$

Pour déterminer F_i , on utilise les équations de Maxwell et la conservation de la charge, notamment les relations de passage à la surface de la particule. Nous avons donc les équations suivantes :

$$\Delta\phi = 0, \quad (2.3)$$

$$[\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{D}] = \gamma, \quad (2.4)$$

$$[\hat{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{j}] = -\frac{\partial\gamma}{\partial t}, \quad (2.5)$$

où γ est la densité surfacique de charges libres, $\mathbf{D} = \epsilon_r \epsilon_0 \mathbf{E}$ l'induction électrique, et $\mathbf{j} = \sigma_r \mathbf{E}$ est le courant de charges d'après la loi d'Ohm. Pour pouvoir exploiter ces équations avec nos hypothèses sur la forme de la perturbation, on réécrit les équations en coordonnées ellipsoïdales. En réécrivant l'équation 2.3 en coordonnées ellipsoïdales, on obtient

$$\frac{d^2 F_i}{d\xi^2} + \frac{dF_i}{d\xi} \frac{d}{d\xi} \ln [(\xi + a_i^2)R(\xi)] = 0,$$

avec $R(u) = \sqrt{(u + a_1^2)(u + a_2^2)(u + a_3^2)}$. Cette équation admet 2 solutions : une homogène, et une variable dans l'espace. On choisit la solution homogène pour

l'intérieur de la particule en la notant $F_{pi}(t)$. On prend la solution variable dans l'espace pour l'extérieur de la particule (dans le liquide) et on la note $F_{li}(\xi, t) = \frac{F_{pi}(t)}{I_i(0)} I_i(\xi)$, avec $I_i(\xi) = \int_{\xi}^{\infty} \frac{ds}{(s+a_i^2)R(s)}$. Cette intégrale converge vers 0 lorsque ξ tend vers ∞ , ce qui signifie que la perturbation est négligeable loin de la particule. La valeur de la constante a été obtenue par continuité du potentiel en $\xi = 0$. La figure 2.4 représente les variations spatiales de F_i .

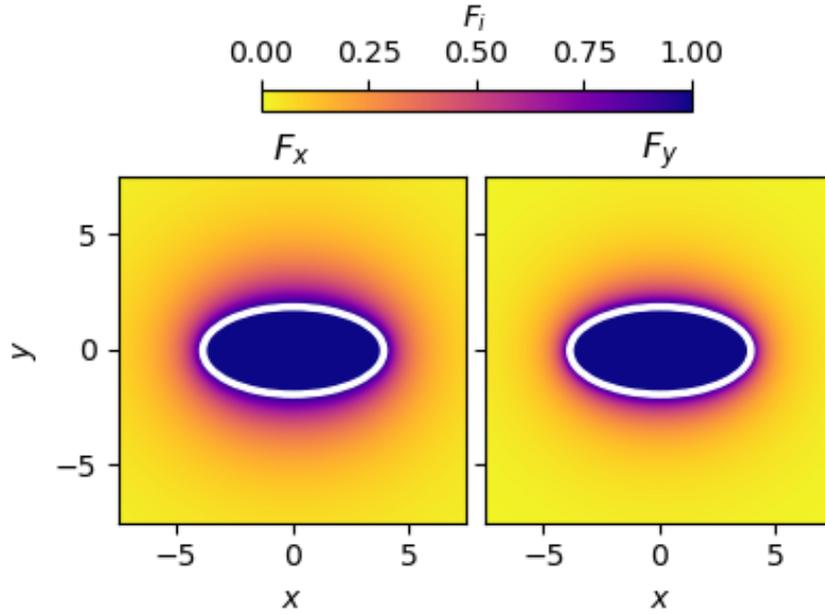


Figure 2.4 – Variations spatiales de la perturbation du potentiel F_i pour une ellipsoïde de rapport d'aspect 2, à gauche pour la composante selon x , à droite pour la composante selon y .

Il reste donc à déterminer $F_{pi}(t)$. Pour cela, les équations 2.4 et 2.5 permettent d'écrire les équations couplées en $\tilde{\gamma}_i$ et F_{pi} suivantes :

$$-\epsilon_1 \left[(1 + F_{pi}) - 2 \frac{F_{pi}}{I_i(0)} \frac{1}{R(0)} \right] + \epsilon_p (1 + F_{pi}) = \frac{2h_\xi a_i^2}{\epsilon_0 E_{0i} x_i} \gamma_i = \tilde{\gamma}_i, \quad (2.6)$$

et

$$-\sigma_1 \left[(1 + F_{pi}) - 2 \frac{F_{pi}}{I_i(0)} \frac{1}{R(0)} \right] + \sigma_p (1 + F_{pi}) = \tau_0 \left(\dot{\tilde{\gamma}}_i + \frac{\dot{E}_{0i}}{E_{0i}} \tilde{\gamma}_i \right). \quad (2.7)$$

avec $\tau_0 = \frac{\epsilon_1 \epsilon_0}{\sigma_1}$. En notant $n_i = \frac{R(0)I_i(0)}{2}$, $\kappa_\alpha = \frac{\alpha_p}{\alpha_1} - 1$ et $\tau_i = \tau_0 \frac{1+n_i \kappa_\epsilon}{1+n_i \kappa_\sigma}$, ces

équations peuvent être réécrite de la manière suivante :

$$F_{pi}(t) = \frac{\tilde{\gamma}_i n_i + \kappa_\epsilon n_i}{1 + \kappa_\epsilon n_i} , \quad (2.8)$$

$$\dot{\tilde{\gamma}}_i + \left[\frac{\dot{E}_{0i}}{E_{0i}} + \frac{1}{\tau_i} \right] \tilde{\gamma}_i = \frac{1}{\tau_0} \frac{\kappa_\sigma - \kappa_\epsilon}{1 + \kappa_\epsilon n_i} . \quad (2.9)$$

Le terme n_i nous intéresse particulièrement ici. Il est appelé facteur de dépolarisation, et ne dépend que de la géométrie de la particule. Il est compris entre 0 et 1, et la somme des trois facteurs de dépolarisation vaut 1. Pour $a_1 > a_2 > a_3$, on a $n_1 < n_2 < n_3$. Suivant la valeur des rapports κ_ϵ et κ_σ , il indique à quel point la perturbation sera grande. On retrouve ce facteur géométrique lorsqu'on calcule le couple visqueux lors de la rotation d'un ellipsoïde dans un fluide au repos [50] :

$$\Gamma_{\mu 1} = -2\mu V \frac{a_2^2 + a_3^2}{a_2^2 n_2 + a_3^2 n_3} \omega_1 = -\alpha_1 \omega_1 , \quad (2.10)$$

$$\Gamma_{\mu 2} = -2\mu V \frac{a_3^2 + a_1^2}{a_3^2 n_3 + a_1^2 n_1} \omega_2 = -\alpha_2 \omega_2 , \quad (2.11)$$

$$\Gamma_{\mu 3} = -2\mu V \frac{a_1^2 + a_2^2}{a_1^2 n_1 + a_2^2 n_2} \omega_3 = -\alpha_3 \omega_3 . \quad (2.12)$$

En résolvant l'équation différentielle 2.9, on obtient la forme suivant pour la densité surfacique de charge libre normalisée :

$$\tilde{\gamma}_i(t) = \frac{\kappa_\sigma - \kappa_\epsilon}{1 + \kappa_\epsilon n_i} \frac{1}{E_{0i}(t)} \frac{1}{\tau_i} \int_0^t e^{-\frac{t}{\tau_i}} E_{0i}(t - \tau) d\tau = \frac{\kappa_\sigma - \kappa_\epsilon}{1 + \kappa_\epsilon n_i} \Pi_i(t) \quad (2.13)$$

$\Pi_i(t) = \frac{1}{\tau_i} \frac{1}{E_{0i}(t)} \int_0^t e^{-\frac{t}{\tau_i}} E_{0i}(t - \tau) d\tau$ est le facteur temporel de nos variables qui exprime un effet de mémoire des variations du champ électrique. Cet effet est induit par la conductivité qui empêche le mouvement instantané des charges libres.

On a finalement

$$F_{pi}(t) = \left(\frac{1}{1 + n_i \kappa_\sigma} - \frac{1}{1 + n_i \kappa_\epsilon} \right) \Pi_i(t) - \frac{n_i \kappa_\epsilon}{1 + n_i \kappa_\epsilon} \quad (2.14)$$

On a donc tous les ingrédients nécessaires pour le calcul du champ électrique, puis de la charge surfacique totale, et enfin du dipôle. On obtient l'ex-

pression suivante pour le dipôle :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 V \sum_{i=3}^3 E_{0i}(t) \left[\left(\frac{\kappa_\sigma}{1 + n_i \kappa_\sigma} - \frac{\kappa_\epsilon}{1 + n_i \kappa_\epsilon} \right) \Pi_i(t) + \frac{\kappa_\epsilon}{1 + n_i \kappa_\epsilon} \right] \hat{\mathbf{x}}_i . \quad (2.15)$$

En regardant l'expression du dipôle 2.15, on peut remarquer une partie dont les composantes sont toujours proportionnelles à celles du champ électrique initial : $\mathbf{P}^\infty = \epsilon_0 V \sum_{i=1}^3 E_{0i}(0) \frac{\kappa_\epsilon}{1 + n_i \kappa_\epsilon} \hat{\mathbf{x}}_i$. Il s'agit du dipôle instantané créé par la différence de permittivité diélectrique entre la particule et le liquide. Si les composantes sont proportionnelles aux composantes respectives du champ électrique extérieur, le dipôle total lui ne l'est pas à cause des facteurs de dépolarisation $\frac{P_i^\infty}{P_j^\infty} = \frac{\chi_i^\infty E_{0i}}{\chi_j^\infty E_{0j}} \neq \frac{E_{0i}}{E_{0j}}$. Cette différence d'orientation se traduit par un couple électrodynamique sur la particule pour compenser cet écart.

2.2.2 Équilibre mécanique - Positions d'équilibre et stabilité

Pour déterminer les positions d'équilibre, on établit un système d'équations dont on pourra trouver les solutions stationnaires.

Les composantes du dipôle réduit $P'_i = P_i - P_i^\infty$ peuvent être exprimés sous forme d'équation différentielle :

$$\frac{dP'_i}{dt} = -\frac{1}{\tau_i} \left[P'_i - (\chi_i^0 - \chi_i^\infty) E_{0i} \right] , \quad (2.16)$$

où $\chi_i^0 = \epsilon_0 V \frac{\kappa_\epsilon}{1 + n_i \kappa_\epsilon}$ et $\chi_i^\infty = \epsilon_0 V \frac{\kappa_\sigma}{1 + n_i \kappa_\sigma}$. On a donc 3 équations avec les trois composantes du dipôle. Comme mentionné dans l'approche qualitative, la particule va subir un couple électrodynamique $\epsilon_1 \mathbf{P} \times \mathbf{E}_0 = \epsilon_1 \mathbf{P}' \times \mathbf{E}_0$.

On obtient 3 autres équations grâce au principe fondamental de la dynamique en rotation, en négligeant le moment d'inertie de la particule :

$$-\alpha_1 \omega_1 + \epsilon_1 (\mathbf{P} \times \mathbf{E}_0) \cdot \hat{\mathbf{x}}_1 = 0 , \quad (2.17)$$

$$-\alpha_2 \omega_2 + \epsilon_1 (\mathbf{P} \times \mathbf{E}_0) \cdot \hat{\mathbf{x}}_2 = 0 , \quad (2.18)$$

$$-\alpha_3 \omega_3 + \epsilon_1 (\mathbf{P} \times \mathbf{E}_0) \cdot \hat{\mathbf{x}}_3 = 0 , \quad (2.19)$$

où $\alpha_i = 2\mu V \frac{a_j^2 + a_k^2}{a_j^2 n_j + a_k^2 n_k}$ est le coefficient de frottement visqueux en rotation.

On effectue un dernier changement de variable, en considérant une particule sphéroïdale (à symétrie axiale) oblongue ($a_1 \geq a_2 = a_3$). La position de la particule est repérée par les angles d'Euler ϕ, θ, α , représentés sur la figure 2.3. L'axe 1 sera noté \parallel , et les axes 2 et 3 \perp . On obtient alors les équations suivantes :

$$\dot{\theta} = \frac{\epsilon_1}{\alpha_\perp} [-(\chi_\parallel^\infty - \chi_\perp^\infty)E_0^2 \sin \theta \cos \theta + P_Q E_0 \cos \theta - P_1 E_0 \sin \theta] \quad (2.20)$$

$$\dot{P}_Q = -\frac{1}{\tau_\perp} [P_Q - (\chi_\perp^0 - \chi_\perp^\infty)E_0 \sin \theta] + \dot{\alpha} P_N, \quad (2.21)$$

$$\dot{P}_N = -\dot{\alpha} P_Q - \frac{1}{\tau_\perp} P_N, \quad (2.22)$$

$$\dot{P}_1 = -\frac{1}{\tau_\parallel} [P_1 - (\chi_\parallel^0 - \chi_\parallel^\infty)E_0 \cos \theta], \quad (2.23)$$

$$\dot{\alpha} = \epsilon_1 \frac{P_N E_0}{\sin \theta} \left(\frac{\sin^2 \theta}{\alpha_\parallel} + \frac{\cos^2 \theta}{\alpha_\perp} \right), \quad (2.24)$$

$$\dot{\phi} = -\frac{\epsilon_1 E_0}{\alpha_\perp} P_N \frac{\cos \theta}{\sin \theta}. \quad (2.25)$$

Les solutions stationnaires de ce problème demandent de résoudre le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} 0 = -(\chi_\parallel^\infty - \chi_\perp^\infty)E_0^2 \sin \theta \cos \theta + P_Q E_0 \cos \theta - P_1 E_0 \sin \theta, \\ P_Q = \dot{\alpha} \tau_\perp P_N + (\chi_\perp^0 - \chi_\perp^\infty)E_0 \sin \theta, \\ P_N = -\dot{\alpha} \tau_\perp P_Q, \\ P_1 = (\chi_\parallel^0 - \chi_\parallel^\infty)E_0 \cos \theta, \end{cases} \quad (2.26)$$

avec $\dot{\alpha}$ constant.

Ce système d'équations admet 2 solutions, pour $\theta = 0$ et $\theta = \frac{\pi}{2}$. On note que ces 2 orientations correspondent à l'orientation de la particule pour laquelle le couple électrodynamique s'annule. En effet, il est alors compensé par le couple visqueux.

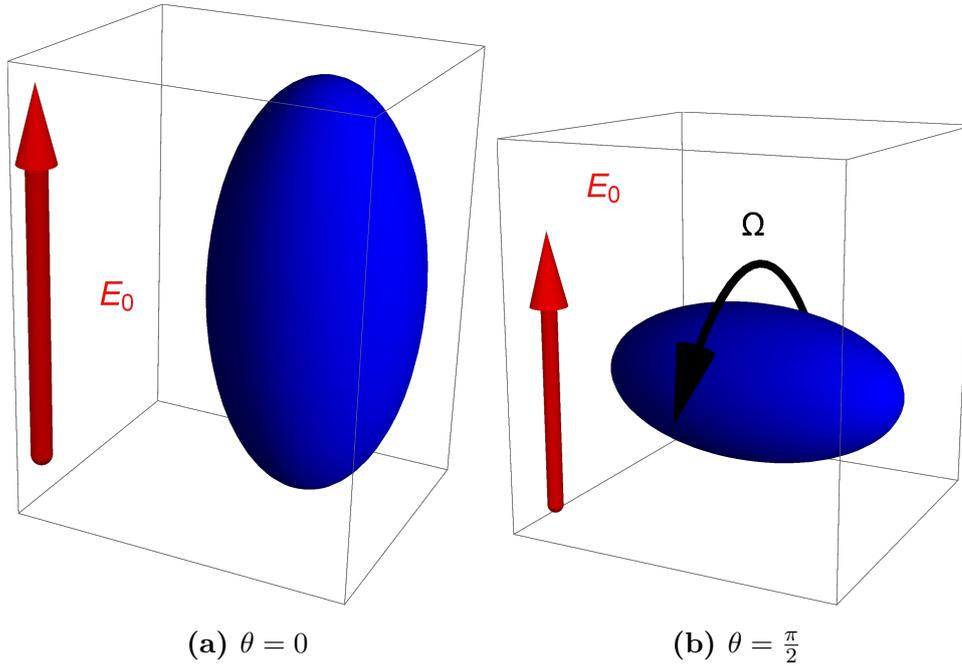


Figure 2.5 – Positions d'équilibre du sphéroïde oblong dans un champ constant.

Pour la première solution 2.5a, la particule est alignée avec le champ électrique. Le dipôle est alors selon l'axe principal de la particule, aligné avec le champ électrique $\mathbf{P} = (\chi_{\parallel}^0 - \chi_{\parallel}^{\infty})E_0\hat{x}_1$. Dans ce cas, la particule ne tourne pas. On peut tout de suite noter que pour $\chi_{\parallel}^0 - \chi_{\parallel}^{\infty} > 0$, le dipôle est dans la même direction que le champ électrique, et cette position est stable en permanence. Dans le cas contraire, le calcul de la jacobienne montre que cette position devient instable au-delà d'une certaine valeur du champ électrique $E_{\parallel}^2 = -\frac{\alpha_{\perp}}{\epsilon_1\tau_{\perp}(\chi_{\parallel}^0 - \chi_{\perp}^{\infty})}$. Pour que cette condition d'instabilité existe, les propriétés du fluide et de la particule doivent répondre à la contrainte suivante : $\chi_{\parallel}^0 - \chi_{\perp}^{\infty} < 0$. Cette condition ainsi que celle de l'opposition du dipôle avec le champ électrique sont en particulier vérifiées dans le cas d'une particule isolante ($\sigma_p = 0$). Il y a également une seconde condition d'instabilité, mais qui n'est jamais remplie dans le cas d'une particule oblongue.

Dans la seconde position stationnaire 2.5b, la particule est perpendiculaire au champ électrique ($\theta = \frac{\pi}{2}$), le dipôle prend un angle fini avec le champ électrique, et la particule tourne à une vitesse fixée. Cette vitesse de rotation est

$\omega_1 = \dot{\alpha} = \frac{1}{\tau_{\perp}} \sqrt{\frac{E_0^2}{E_c^2} - 1}$. On remarque que l'on retrouve une vitesse de rotation dont le carré varie linéairement avec le carré de la valeur du champ électrique. Cet état n'est possible que si la valeur du champ électrique est supérieure à la valeur critique $E_c^2 = \frac{\alpha_{\parallel}}{\epsilon_1 \tau_{\perp} (\chi_{\perp}^0 - \chi_{\perp}^{\infty})}$. Cette valeur de champ électrique (et donc cette position stationnaire) n'existe que si $\chi_{\perp}^0 < \chi_{\perp}^{\infty}$. Cette condition est la même que celle de l'instabilité du dipôle dans la première solution. L'analyse de la stabilité par la jacobienne nous donne également 2 valeurs limites de champ électrique. La première est $E_{\perp 1}^2 = -\frac{\alpha_{\perp}}{\epsilon_1 \tau_{\parallel} (\chi_{\parallel}^0 - \chi_{\perp}^{\infty})}$. Cette valeur limite n'existe que lorsque $\chi_{\parallel}^0 < \chi_{\perp}^{\infty}$. On retrouve la même condition d'existence que pour la stabilité de l'état aligné avec le champ électrique. La seconde valeur limite de champ est $E_{\perp 2}^2 = -\frac{\alpha_{\parallel}}{\epsilon_1 \tau_{\perp} (\chi_{\parallel}^{\infty} - \chi_{\perp}^{\infty})} (1 - \frac{\alpha_{\perp} \tau_{\perp}}{\alpha_{\parallel} \tau_{\parallel}})$. L'état de rotation est stationnaire lorsque le champ électrique est inférieur à cette valeur limite. Les conditions d'existence de cette valeur limite sont assurées par le caractère oblong de la particule ($n_{\parallel} < n_{\perp}$).

Pour résumer, on a d'une part un certain nombre de conditions sur les propriétés du liquide et de la particule permettant l'existence de domaines de stabilité pour les comportements de la particule. Ces conditions sont $\kappa_{\sigma} < \kappa_{\epsilon}$, $n_{\parallel} < n_{\perp}$ et $\chi_{\parallel}^0 < \chi_{\perp}^{\infty}$. Si ces conditions sont respectées, on a 4 valeurs de champ limite. 3 des ces valeurs sont ordonnées comme suit pour une particule oblongue $E_c < E_{\perp 1} < E_{\parallel}$. Lorsqu'on augmente le champ électrique, seul l'état aligné avec le champ est d'abord possible et stable, puis l'état de rotation devient possible, mais il est instable. Enfin pour $E_{\perp 1} < E_0 < E_{\parallel}$, les deux états sont stables ; on a une particule bistable. Suivant les conditions, ce n'est pas le même état qui deviendra instable le premier. De plus, ces seuils sont également valables pour des bâtonnets hémisphériques, avec des variations pour les valeurs de n_{\parallel} et n_{\perp} puisque ce sont des facteurs géométriques. Le résumé de ce comportement en fonction du champ électrique est représenté sur la figure 2.6.

Jusqu'ici nous n'avons parlé que de particules ellipsoïdales. Cependant, les particules que j'ai utilisées dans les travaux qui suivent sont plus proches de cylindres. En première approximation, il est possible d'assimiler des cylindres de rapport d'aspect suffisamment grand à des ellipsoïdes de rapport d'aspect similaire [47]. Ensuite il est possible d'adapter l'analyse présentée ici pour des cylindres ou des sphérocyndres en trouvant le changement de coordonnées

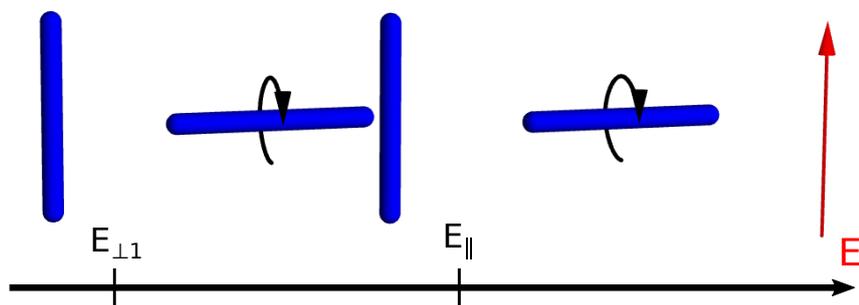


Figure 2.6 – Résumé de l'électrorotation de Quincke pour un bâtonnet

approprié permettant de calculer rigoureusement le facteur de dépolarisation n_i . Le reste du raisonnement reste inchangé.

2.3 Réalisation expérimentale de bâtonnets de Quincke individuels

Pour chercher à confirmer cette analyse théorique, j'ai réalisé des expériences avec des solutions très diluées de bâtonnets de telle sorte à pouvoir étudier leur comportement individuel. Sur la figure 2.7a, les différents comportements des bâtonnets colloïdaux pour différentes valeurs de champ électrique sont illustrés par superposition de séquences d'images. Nous observons qu'en dessous d'une certaine valeur de champ $E_Q \approx 100$ V, les bâtonnets ne bougent pas, et restent horizontaux. Au-delà de cette valeur, les bâtonnets se mettent progressivement à se déplacer, mais aucun bâtonnet vertical n'est observé. Il semblerait en effet que les interactions des bâtonnets avec la paroi modifient leur comportement [17]. Des phénomènes d'adhésion sont notamment observés avec certains bâtonnets qui ne se mettent jamais en mouvement malgré un fort champ électrique appliqué.

Pour tenter de résoudre ce problème lié aux interactions avec la paroi, des bâtonnets millimétriques obtenus par impression 3D sont utilisés. Ils sont au départ dans le même solvant que les bâtonnets colloïdaux, et en absence de champ électrique ils coulent dans ce solvant. Lorsque la tension est appliquée

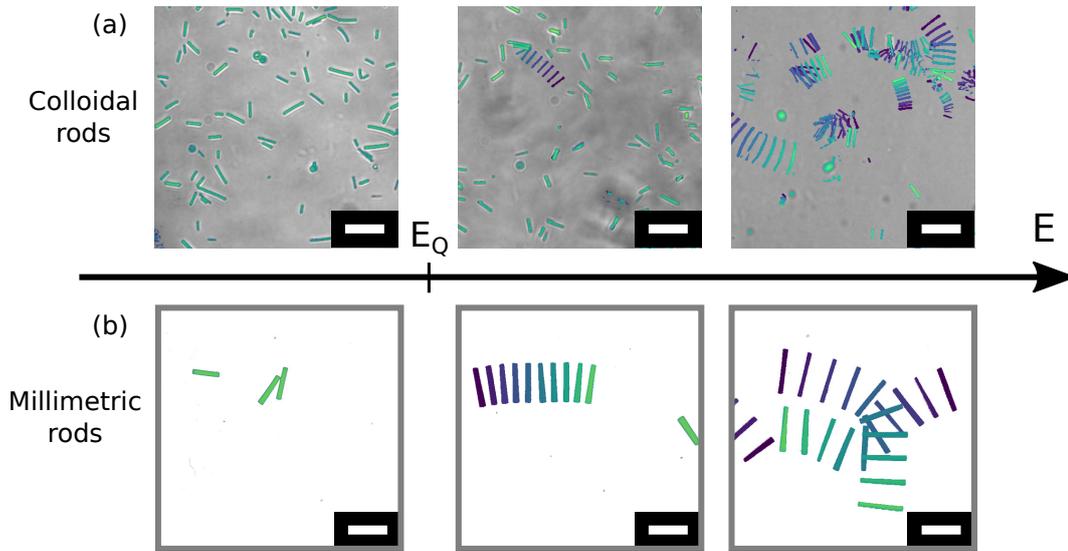


Figure 2.7 – Comportement de bâtonnets colloïdaux (en haut, a), les barres d’échelle mesurent $5.6 \mu\text{m}$) et millimétriques (en bas, b), les barres d’échelle mesurent 1 mm) sous l’effet Quincke proche d’une surface. La couleur code pour le temps, respectivement 0.1 s pour le pas de temps des bâtonnets colloïdaux et 0.5 s pour les bâtonnets millimétriques.

pour obtenir un champ électrique, le comportement des bâtonnets, visible sur la figure 2.7b, est le même que celui des colloïdes. A l’échelle millimétrique, la gravité empêche les bâtonnets de se mettre en position verticale. En effet, lorsque la densité du solvant est modifiée de telle sorte que les particules flottent, la même phénoménologie est observée sur la face supérieure du dispositif. Ainsi un ajustement plus fin de la densité du solvant devrait permettre d’observer le comportement bistable des bâtonnets lorsqu’ils se trouvent en suspension dans le solvant.

Pour compléter cette confirmation expérimentale, il est à noter que Cēbers *et al.* ont observé expérimentalement la bistabilité pour des particules d’un rapport d’aspect plus grand [47] dans un liquide de même masse volumique que celle des bâtonnets.

Ainsi l’effet Quincke qui permet de motoriser les colloïdes pour en faire

des colloïdes actifs en fait également des particules bistables. Comme je le montrerai dans la suite de cette thèse, j'ai pu exploiter cette caractéristique pour exhiber des propriétés intéressantes d'assemblées de particules actives synthétiques bistables, et ce malgré l'absence d'observation expérimentale à l'échelle individuelle confirmant cette analyse théorique.

3.1 Fabrication des bâtonnets

3.1.1 Bâtonnets colloïdaux

Pour produire des bâtonnets à l'échelle colloïdale, nous suivons le protocole introduit par Fernandez *et al.* [51]. L'idée principale est d'étirer des gouttelettes de résine photorésistante en cisillant une émulsion pour former des microfiliaments rigides puis de les casser pour obtenir une distribution de longueur souhaitée. Ce protocole est illustré dans la figure 3.1.

Afin d'obtenir un cisaillement consistant, la géométrie, le volume de glycérol et la position de la pale sont maintenus constants avec environ 120 mL de glycérol dans un bécher de 250 mL de diamètre 6 cm. La pale est placée à 1 cm

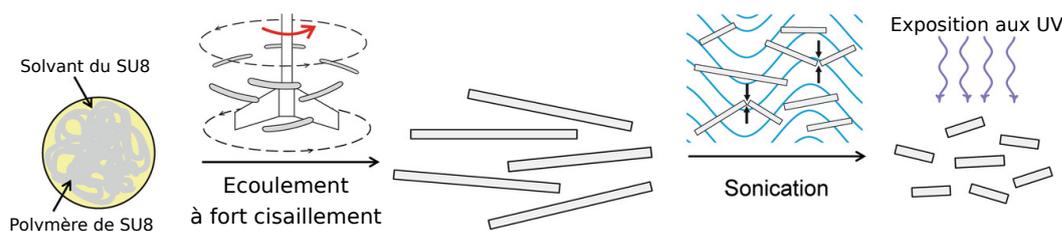


Figure 3.1 – Illustration du protocole de fabrication des bâtonnets, d’après [51].

au-dessus du fond du bécher. Le glycérol est agité à 1000 tr/min à l’aide d’un agitateur Heidolph HEI-Torque 100 et d’une lame Caframo A160. Une fois que l’agitation du glycérol est stable, 0.5 mL de résine SU8-100 est versé avec une seringue près de la paroi du bécher à la surface du glycérol. La résine est injectée telle quelle pour réaliser des bâtonnets clairs. Pour obtenir des bâtonnets fluorescents, nous ajoutons un colorant fluorescent comme la rhodamine 110 à la résine (5 mg pour 1 g de résine). On agite pendant 10 min.

Sous l’effet du cisaillement, la résine et son solvant sont émulsifiés, les gouttelettes sont étirées et le solvant finit par se dissoudre dans le glycérol. Il en résulte la formation de filaments solides de SU8. Ces filaments sont cassés à l’aide d’ultrasons pour obtenir des bâtonnets de la longueur souhaitée. Pour ce faire, le mélange de bâtonnets est transféré dans un bécher plus large de 600 mL. La sonication dure 140 min. Le contrôle de la température est important pendant cette étape, sinon les bâtonnets peuvent se déformer et même reprendre leur forme sphérique si la température dépasse la température de transition vitreuse [52]. Pour maintenir la température constante, de l’eau froide est pompée en continu dans le bain à ultrasons et de la glace est ajoutée de temps en temps. Le rapport d’aspect des bâtonnets est contrôlé pendant toute la durée de la sonication. Enfin, les bâtonnets sont durcis à la lumière UV pour garantir leur stabilité dans le temps et dans divers solvants.

À ce stade, notre suspension de bâtonnets est presque prête. Les bâtonnets sont encore dans le glycérol, un fluide assez visqueux, et il reste quelques gros morceaux de résine (voir figure 3.2). La dernière étape est donc une étape de nettoyage avec un changement de solvant. Une solution de sel de dodécyl

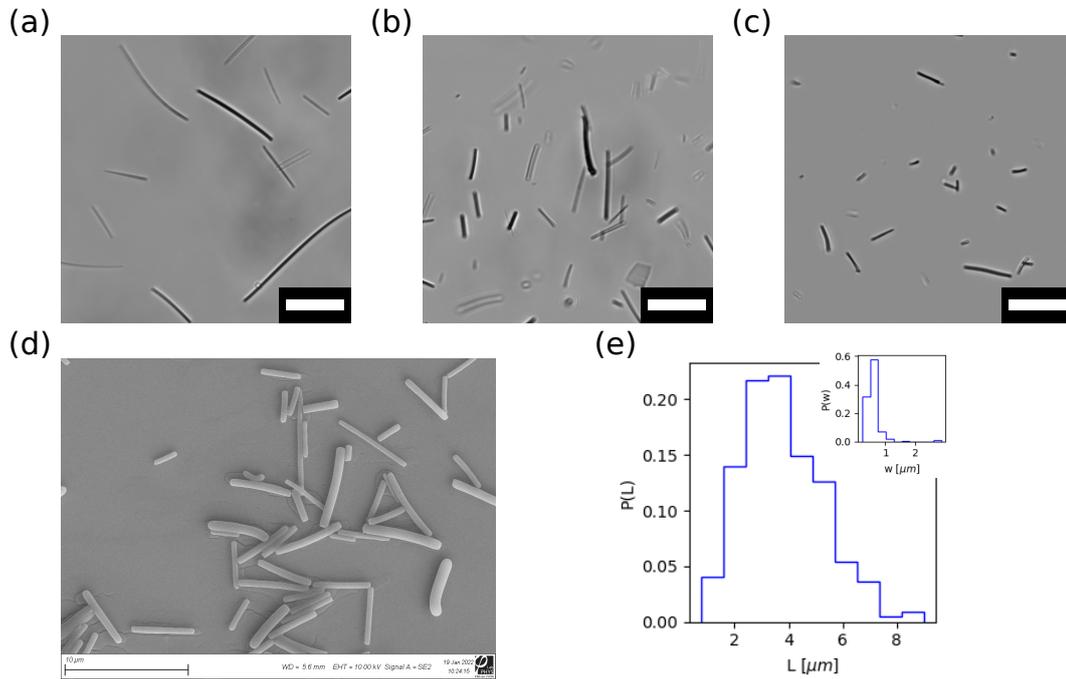


Figure 3.2 – Image des bâtonnets en microscopie classique pendant le processus de fabrication : a) avant la sonication, b) pendant, c) à la fin du processus. La barre de mesure fait $6.9\ \mu\text{m}$ de long. d) Image au microscope électronique à balayage. e) Distribution de taille des bâtonnets nettoyés.

sulfate de sodium (SDS) dans l'eau à $0,5\%_{wt}$ est ajoutée à la suspension de bâtonnets. Après 20 min de centrifugation à 1700g, le surnageant est éliminé, et le sédiment de bâtonnets restant est fusionné avec un autre et un volume de solution d'eau et de SDS. Cette étape est répétée jusqu'à ce que la concentration de bâtonnets soit multipliée par 8. Après une courte centrifugation de 2 min à 1000g, on conserve le surnageant sous forme de bâtonnets propres en suspension dans une solution d'eau et de SDS à $0,5\%_{wt}$. Les bâtonnets peuvent être imagés avec la microscopie électronique à balayage 3.2, et avec suffisamment d'images de bâtonnets, nous avons la distribution de taille des bâtonnets SU8 colloïdaux 3.2.

3.1.2 Bâtonnets millimétriques

Les bâtonnets à l'échelle millimétrique sont produits par des techniques d'impression 3D. Une fois le dessin réalisé sur un logiciel de CAO 3D, par exemple avec Autodesk Fusion 360, nous l'envoyons à l'imprimante.

L'impression 3D est un processus de fabrication additive dans lequel le produit est construit par l'ajout de matériaux. Cette technique permet de fabriquer des géométries précises, ce qui n'est pas possible avec d'autres procédés de fabrication. Notre imprimante 3D est une Formlabs Form 3 qui utilise la technique SLA. La plate-forme d'impression est plongée dans la résine et un laser se déplace sur la zone d'impression pour réticuler la résine, ligne par ligne, couche par couche. En raison de l'épaisseur du faisceau laser, une résolution minimale peut être obtenue. Comme on peut le voir sur la figure 3.3, la taille des tiges imprimées n'est pas exactement celle définie dans le logiciel. Une fois les tiges imprimées, elles sont lavées dans du 2-propanol (ou de l'alcool isopropylique - IPA) pour éliminer la résine non polymérisée. Une dernière étape de réticulation est effectuée par exposition aux UV et chauffage à 60 °C pour assurer un durcissement complet de la résine. Les tiges sont ensuite retirées de leur support à l'aide d'une lame de rasoir, expliquant l'extrémité biseautée des tiges que l'on peut voir sur la figure 3.3. Ce biseau facilitera le suivi de la rotation des tiges autour de leur axe principal.

Comme on peut le voir sur la figure 3.3, la distribution de la taille des bâtonnets millimétriques est légèrement différente de celle des bâtonnets colloïdaux, mais cette légère différence n'affecte pas les résultats expérimentaux de manière significative.

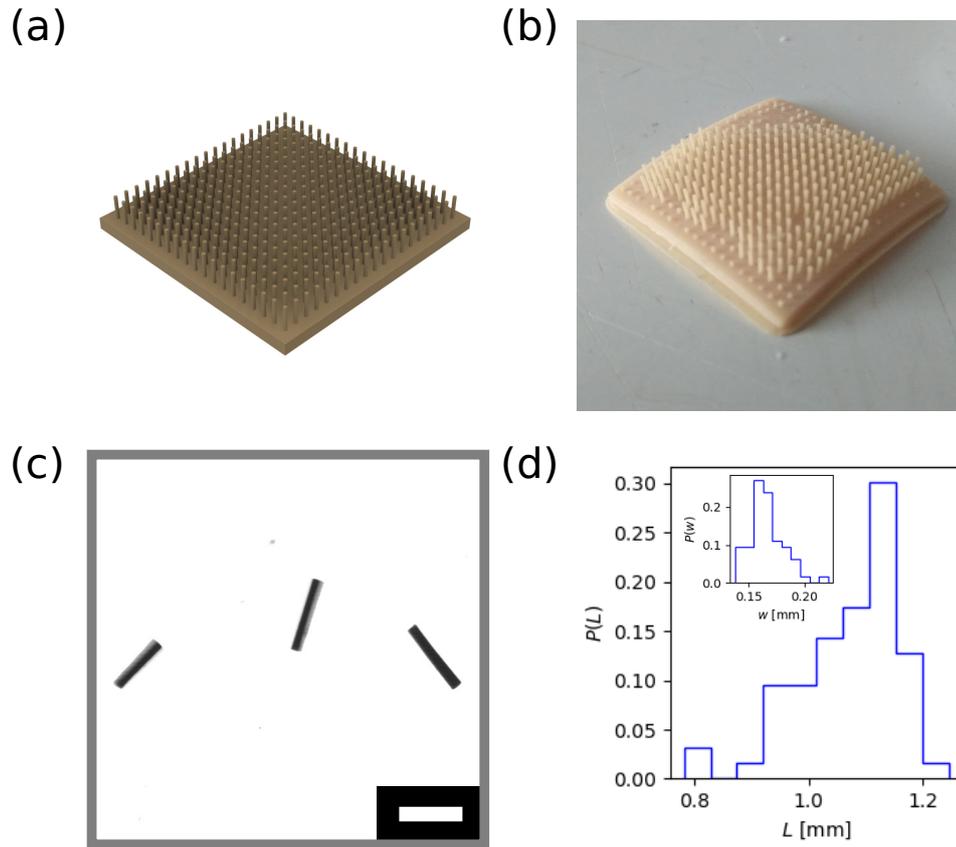


Figure 3.3 – a) Modélisation des bâtonnets sur leur support pour l’envoi à l’impression 3D. Il y a $19 \times 19 = 361$ bâtonnets sur cette plaquette. b) Les bâtonnets après impression. Le support fait 2 cm de large. c) Image des bâtonnets, la barre d’échelle mesure 1 mm. d) Distribution de la longueur des bâtonnets millimétriques, et en encart distribution de leur largeur.

3.2 Dispositif expérimental

3.2.1 Construction des chambres expérimentales appropriées

Pour obtenir le champ électrique nécessaire à l’obtention de l’effet Quincke, j’applique simplement une tension U entre deux surfaces planes conductrices séparées d’une distance d . La valeur du champ électrique est alors donnée par $E_0 = \frac{U}{d}$. Dans la suite de ce manuscrit, j’utilise la tension plutôt que le champ

électrique pour décrire les changements des phénomènes observés.

Les chambres sont assemblées avec des lames ou des lamelles de verre recouvertes d'oxyde d'indium et d'étain de Solems, comme illustré sur la figure 3.4. Ces lames de verre sont lavées avec de l'IPA avant l'assemblage. Pour les bâtonnets colloïdaux, l'espacement est réalisé avec du ruban adhésif double face d'une épaisseur de $25\ \mu\text{m}$ (Teraoka). Ce ruban est découpé à la forme souhaitée à l'aide d'un traceur de découpe Graphtec. La géométrie en V est utilisée pour avoir une zone non couverte par les connexions de fluides.

Pour les bâtonnets millimétriques, les lames de verre sont séparées par une plaque acrylique d'une épaisseur de 7 mm, découpée au laser aux dimensions voulues. Les connexions fluidiques sont réalisées dans ces pièces acryliques afin de libérer la zone de visualisation de la chambre. La chambre est scellée avec de la colle époxy.

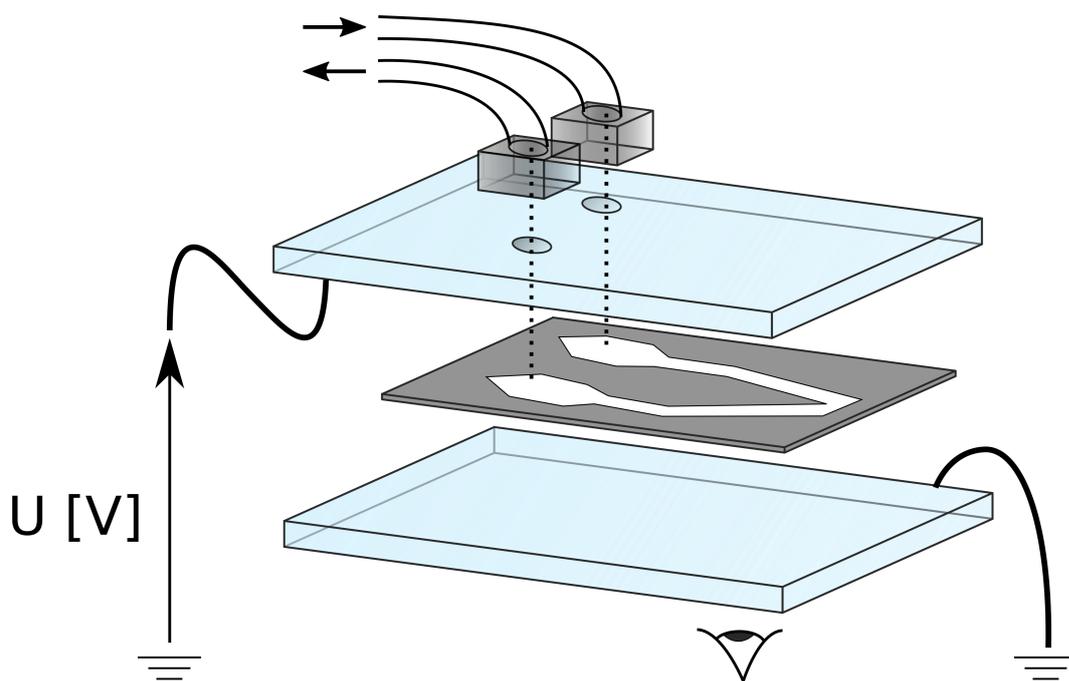


Figure 3.4 – Schéma de la chambre expérimentale. En bleu, on a les deux lames ou lamelles de verre couvertes d'ITO, en gris l'espaceur en scotch, et on peut voir les connectiques fluidiques sur le dessus de la chambre.

Nous utilisons un amplificateur électronique Trek 609E-6 pour appliquer

la tension. Le signal électrique est imposé par un générateur de fonctions TTI TG2000 ou un générateur de fonctions Agilent. Un ampèremètre (multimètre numérique Keysight TT2000) est utilisé pour mesurer le courant dans la chambre. Les courants typiques mesurés sont des μA ou des dixièmes de μA .

3.2.2 Une histoire d'échange de solvants

D'une part, les bâtonnets colloïdaux sont en suspension dans l'eau avec surnageant, d'autre part les bâtonnets millimétriques ne sont pas dans un solvant. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, l'électrorotation de Quincke fonctionne bien dans un fluide conducteur ayant de faibles propriétés diélectriques (ou une faible polarité). Par conséquent, le solvant approprié doit être choisi et, si nécessaire, un protocole adéquat doit être appliqué pour échanger le solvant. En fait, l'hexadécane avec le sel de sodium de dioctyl sulfosuccinate (Aerosol-OT - AOT) fonctionne bien, mais il s'agit d'une huile minérale, non miscible avec l'eau.

Après quelques essais, le protocole le plus robuste que j'ai établi pour les bâtonnets colloïdaux consiste à retirer la moitié de la solution aqueuse après centrifugation pour la remplacer par le même volume d'IPA. Après la sonication pour améliorer la dispersion des bâtonnets et la centrifugation, le surnageant est éliminé et entièrement remplacé par de l'IPA. Après sonication et centrifugation, la moitié est remplacée par une solution d'hexadécane et d'OLOA 11000 à 1%_{wt}, utilisée dans [51] pour stabiliser les bâtonnets dans les solvants organiques. Une fois de plus, le solvant est entièrement remplacé par cette solution d'hexadécane et d'OLOA après sonication et centrifugation. Ce n'est qu'à ce stade que nous pouvons remplacer la solution d'hexadécane et d'OLOA par la solution appropriée d'hexadécane et d'AOT (généralement à une concentration de $0.12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$). Au début du processus d'échange de solvants, les bâtonnets fluorescents et les bâtonnets transparents peuvent être mélangés dans différentes proportions, généralement 1 :4, pour une visualisation adaptée. La chambre suit le même protocole. Elle est d'abord rincée avec de l'IPA, puis avec la solution d'OLOA dans l'hexadécane et enfin avec la solution d'AOT dans l'hexadécane. Après avoir vérifié que les connexions

électriques sont opérationnelles à l'aide d'un ampèremètre, la suspension de bâtonnets peut être injectée.

La chambre est inclinée pendant 4 h à un angle de 60° pour créer un gradient de densité des bâtonnets. Je pourrai alors évaluer le comportement collectif des bâtonnets actifs à différentes densités.

Pour les bâtonnets millimétriques, leur comportement est fortement influencé par la gravité. En effet, la densité de l'hexadécane est d'environ $0.77 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$, tandis que la densité de la résine utilisée pour l'impression 3D est d'environ $1.2 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$. Par conséquent, le solvant doit être adapté et la concentration d'AOT doit tenir compte de l'écart plus important entre les électrodes. Pour augmenter la densité du solvant, nous utilisons un mélange de tétrachloroéthylène ($\rho = 1.66 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$) et d'hexadécane ($\rho = 0.77 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$) dans des proportions de 50/50. La concentration typique d'AOT que j'utilise pour les baguettes millimétriques est de $0.014 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$.

3.3 Acquisition et analyse des données

3.3.1 Acquisition d'images

Pour l'observation des bâtonnets colloïdaux, nous utilisons un microscope inversé Zeiss Axio Observer A1. Étant donné la taille des bâtonnets, un fort grossissement est nécessaire, et j'ai utilisé un objectif 40x avec une ouverture numérique de 0.65. Selon le type d'images, la position de la source lumineuse est différente. Pour le champ clair, des images en lumière blanche transmise sont réalisées. Pour les images de fluorescence, une lampe à mercure éclaire l'échantillon par le bas. La lumière émise par les fluorophores est captée à travers un filtre vert à 525 nm. Lorsque la tension est constante pendant l'acquisition de l'image, la caméra Ximea MC124MG-SY-UB est utilisée. La taille de ses pixels est de $3.45 \mu\text{m}$, et en fonction de l'expérience, différentes fréquences d'images et tailles d'images sont utilisées. L'exposition est généralement fixée à 10 ms à

25 ms avec un gain de 25 dB à 10 dB afin d'avoir les mêmes paramètres pour les images en champ clair et en fluorescence. La fréquence d'images maximale est donc de 100 Hz, et pour les acquisitions longues, elle est généralement de 20 Hz, alors qu'elle est de 100 Hz pour les acquisitions courtes. Les images acquises sont typiquement carrées et font environ 150 μm de côté.

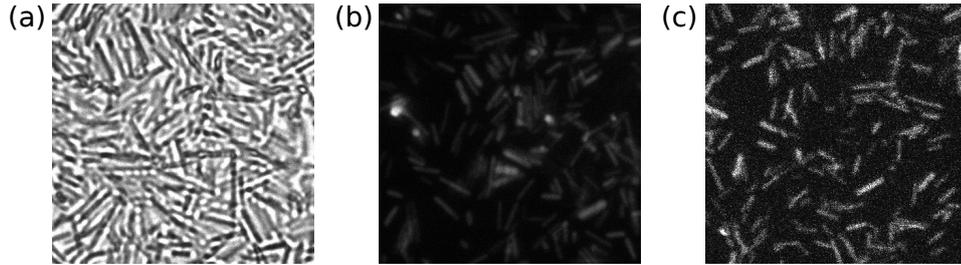


Figure 3.5 – a) Image en champ clair de l'assemblée de bâtonnets, b) Image en fluorescence de a même assemblée de bâtonnets. Chaque image fait 34.5 μm de large. c) Image en microscopie confocale. L'image fait 39.2 μm de large.

Pour une imagerie plus précise de l'assemblage des bâtonnets, nous avons utilisé la microscopie confocale. Au lieu d'une source lumineuse large, un faisceau laser est utilisé, et 2 miroirs mobiles sont utilisés pour balayer la zone imagée dans les directions x - y . La lumière renvoyée par l'échantillon passe par un petit trou, filtrant la lumière provenant de différentes positions z dans l'échantillon. Cela permet une imagerie en profondeur de la cellule expérimentale, c'est-à-dire pour différentes valeurs de z . Cependant, probablement en raison des écarts d'indice de réfraction entre l'air, le verre et l'hexadécane, l'image est rapidement détériorée et les images les plus nettes se trouvent au fond de la chambre. Le dispositif confocal que nous utilisons est le Thorlabs update avec une source laser MCLS à 482 nm, et un filtre à 525 nm avant le tube photo-multiplicateur (PMT). Le pas du laser (des miroirs pour le déplacement en x - y) pour balayer la zone d'acquisition est de 0.96 μm , et la profondeur d'acquisition, déterminée par la taille du trou utilisé, est de 1.2 μm . Une moyenne sur 5 images est réalisée pour lisser l'image finale dans le cas d'images statiques. Une image confocale d'une expérience est visible sur figure 3.5c. Il est à noter qu'au vu du temps d'acquisition pour une zone de 120 $\mu\text{m} \times 120 \mu\text{m}$ sur 20 μm d'épaisseur (environ 1 min), la microscopie confocale permet difficilement de faire une acquisition dynamique d'une expérience. Il est plus simple de faire une acquisition confocale lorsque le système est figé, pour une mesure

de densité par exemple.

Pour les acquisitions avec tension variable dans le temps, nous utilisons un générateur de fonctions Agilent en mode rafale. Une fois déclenché manuellement, le générateur de fonctions produit un nombre programmé de cycles d'une durée programmée. Il génère également un signal de déclenchement pendant que les cycles sont actifs. En utilisant une caméra Ximea MQ022MG-CM, l'acquisition des images est synchronisée avec les variations de tension. Pour cette caméra, la taille des pixels est de $5.5\ \mu\text{m}$ et la fréquence des images est réglée de manière à ce que le nombre d'images au cours d'un cycle soit d'environ 3000.

Pour les tiges millimétriques, nous utilisons une caméra Ximea CB160MG-LX-X8G3, montée sur un microscope Nikon AZ100 avec un objectif 0.5x et un zoom 1x. La fréquence d'images typique est de 25 Hz.

3.3.2 Analyse des images

Comme le système expérimental est nouveau, j'ai mis en place un processus de détection propre à ces expériences à la suite de différents essais. Voici le protocole utilisé dans la suite du manuscrit pour les différentes mesures qui sont présentées.

Mesure de la densité

Pour mesurer la densité, les bâtonnets sont comptés sur des images fluorescentes ou confocales. Une image par expérience est recadrée pour obtenir 2 régions d'aspect homogène, dont une où des lignes peuvent être identifiées. Ce sont les bâtonnets horizontaux. Et une seconde région où l'on peut voir des points. Ce sont les bâtonnets verticaux. Un exemple de détection peut être vu sur la figure 3.6. Une fois la détection effectuée, la densité des bâtonnets est simplement obtenue en divisant le nombre de bâtonnets détectés par la taille

de la zone recadrée. Si l'on reproduit les mesures de densité de plusieurs zones de l'image et pour différents pas de temps de la même expérience, on peut avoir une estimation de l'incertitude de la mesure de densité. On peut voir sur la figure 3.6 qu'il y a une grande dispersion, due aux différences de luminosité entre les bâtonnets, à la distribution non homogène des bâtonnets fluorescents parmi tous les bâtonnets, et au blanchiment.

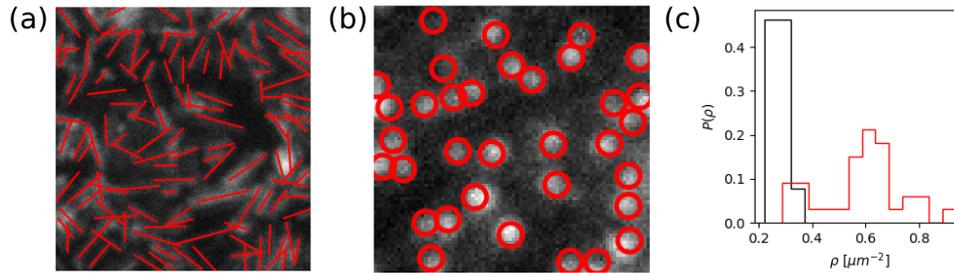


Figure 3.6 – Détection des bâtonnets a) horizontaux (segments rouges) et b) verticaux (cercles rouges). L'image de gauche (a) fait $19\ \mu\text{m}$ de large et l'image de droite fait $7\ \mu\text{m}$ de large. c) Distribution de la mesure de densité pour une même expérience, sur plusieurs images et pour plusieurs points sur l'image. En rouge pour la zone mobile, en noir pour la zone statique.

Mesure de la fraction des phases

Dans un premier temps, on s'intéresse à la mesure de la fraction de phase statique dans un processus stationnaire ou quasi-stationnaire. Pour cela, j'ai utilisé des lots d'images, soit en fluorescence, soit en champ clair. Je tire parti de la motilité de la phase liquide et de son aspect général plus clair (en champ clair) ou au contraire plus sombre (en fluorescence) pour la différencier de la phase statique. Les images sont d'abord lissées à l'aide d'un filtre gaussien de la taille typique d'une longueur de bâtonnet. Ensuite, le minimum, la moyenne ou l'écart-type de toutes les images est calculé. Le minimum donne sur les images en fluorescence un fond sombre pour la zone mobile sur les images en fluorescence. Un seuil est ensuite appliqué pour obtenir une image binaire où chaque phase est identifiée. Ce processus est illustré dans la figure 3.7. Une fois ce processus terminé, nous disposons pour chaque expérience de la taille du domaine statique et de sa fraction globale.

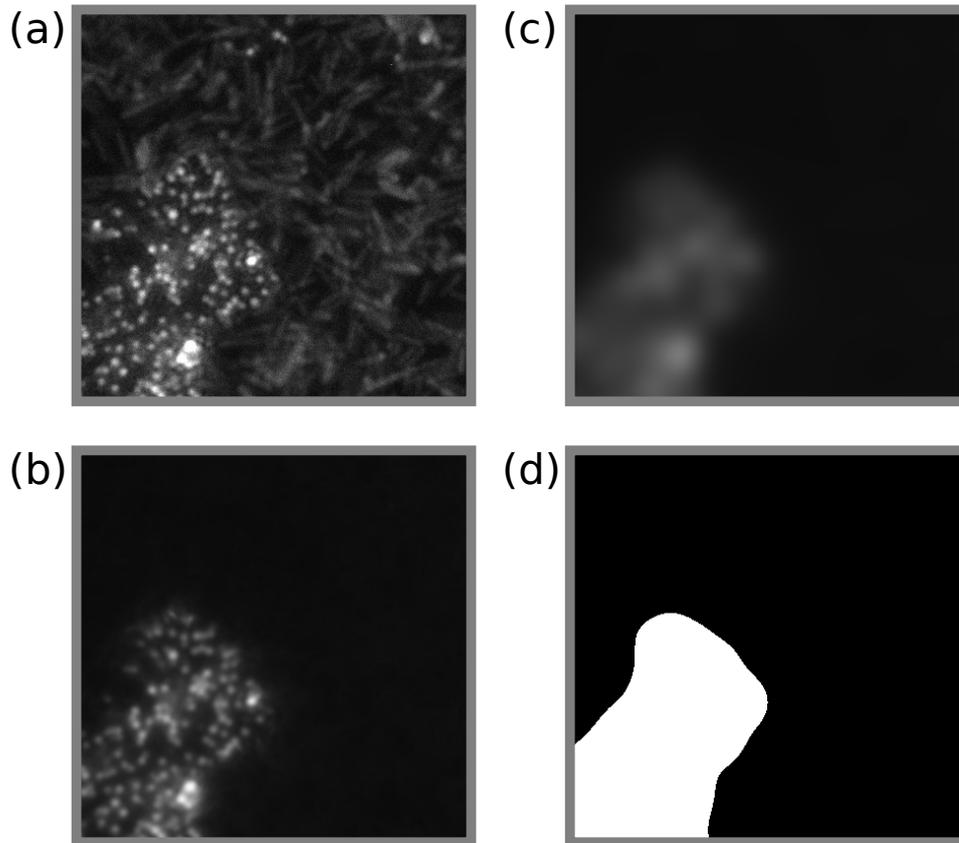


Figure 3.7 – Analyse d’image d’un processus stationnaire : a) Image originale, b) Minimum du lot d’image. On note que seule la partie immobile est restée brillante. c) Flou gaussien appliqué à cette image minimum et, d) Image seuillée. Chaque image fait $34.5\ \mu\text{m}$ de large.

Les bâtonnets fluorescent perdent de la luminosité au fur et à mesure de leur exposition à la lumière excitant les photophores. Ce phénomène est connu et s’appelle le *bleaching* [53] ou blanchissement. Ainsi pour l’étude de phénomène non stationnaire de plusieurs dizaines de secondes voire quelques minutes, la différence de luminosité peut-être très importante, comme illustré sur la figure 3.8, et l’utilisation d’image en fluorescence n’est pas possible.

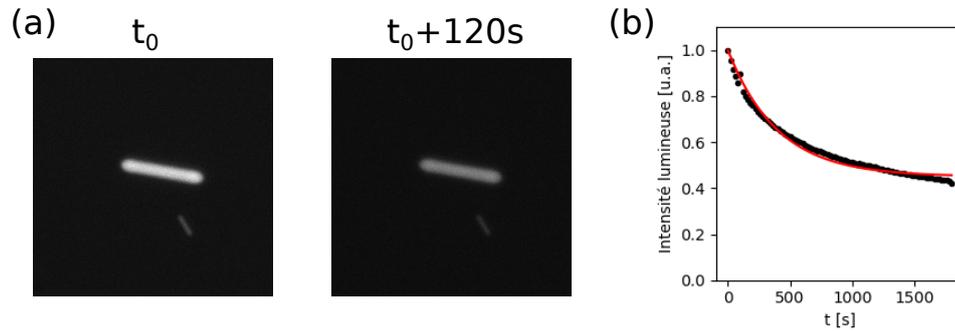


Figure 3.8 – a) Deux images illustrant le phénomène de blanchissement. Chaque image fait $25.9\mu\text{m}$ de large, il s’est écoulé 120 s entre les deux images. b) Intensité lumineuse moyenne normalisée par l’intensité la plus forte au cours du temps. La courbe rouge est une exponentielle décroissante de temps caractéristique 400 s.

De plus, comme on souhaite une mesure instantanée de nos grandeurs et que la moyenne ou la variance du lot d’images sont des mesures agrégées au cours du temps, ces dernières ne peuvent pas être utilisées pour déterminer le seuil. L’idée est donc de s’appuyer sur la différence de luminosité locale entre un zone statique, qui sera sombre à cause des nombreux bâtonnets, et des zones mobiles plus claires. Après un flou gaussien d’une taille typique de quelques diamètres de bâtonnets pour lisser les variations de luminosité à petite échelle, et un ajustement de la valeur des pixels pour éliminer les rares occurrences aux extrêmes de l’intervalle de valeurs, le seuil est identifié comme la valeur de pixels dont la proportion atteint une certaine fraction de celle du pixel le plus représenté (ici 6%). Cette valeur de pixel la plus représentée est, si elle est suffisamment haute, celle du fond lumineux de l’image. Ce processus de seuillage est représenté sur la figure 3.9).

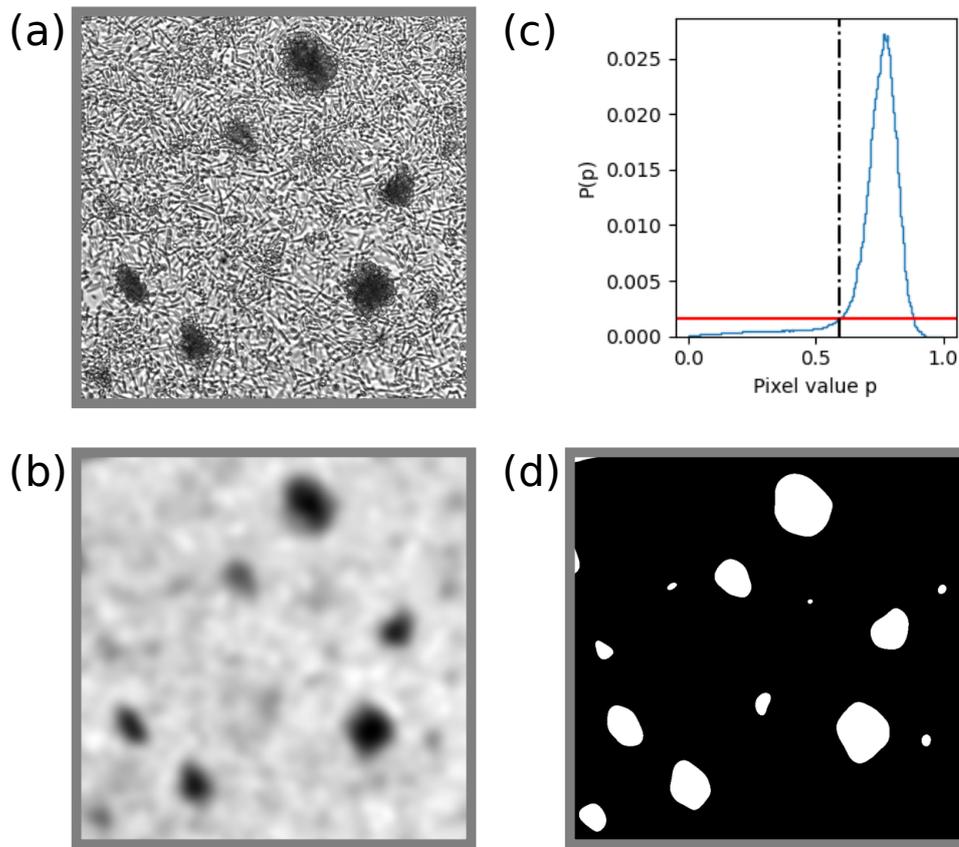


Figure 3.9 – Détection de domaines pour un processus non-stationnaire : a) Image originale, b) Image ajustée après un flou gaussien, c) Distribution de la valeur des pixels, le seuil est indiqué par la ligne verticale noire en pointillés. La ligne horizontale rouge indique 0.06 fois la valeur du pic de distribution. Et d) Image seuillée. Chaque image fait $34.5 \mu\text{m}$ de large.

Ainsi avec les techniques expérimentales et les protocoles d'analyse que j'ai pu développer lors de cette thèse et que je viens de décrire, je suis en mesure de vous présenter les premiers résultats obtenus dans l'étude des comportements collectifs de bâtonnets actifs dans le chapitre qui suit.

CHAPITRE 4

Séparation de phase

Maintenant que nous avons tous les éléments pour expliquer le comportement individuel des bâtonnets et les outils expérimentaux pour étudier leur comportement collectif, je présente dans ce chapitre les résultats auxquels j'ai abouti. Dans un premier temps, je montre la construction du diagramme de coexistence des phases, puis je présente quelques preuves en faveur d'une transition de phase, et enfin j'argumente en quoi cela peut-être considéré comme une séparation de phase induite par la motilité.

4.1 Construction du diagramme de coexistence des phases

Le comportement des différentes phases des bâtonnets de Quincke en interaction est résumé dans la figure 4.4c.

À faible densité, les bâtonnets forment un liquide actif isotrope ne présentant aucun ordre d'orientation et aucun écoulement spontané, même lorsque l'on augmente la densité de sorte que plus d'une couche de colloïdes se forme. La dynamique animée mais non corrélée de ce liquide actif est illustrée dans la figure 4.1. Les zones de même orientation ont une taille typique de l'ordre voire inférieure à celle de la longueur d'un bâtonnet.

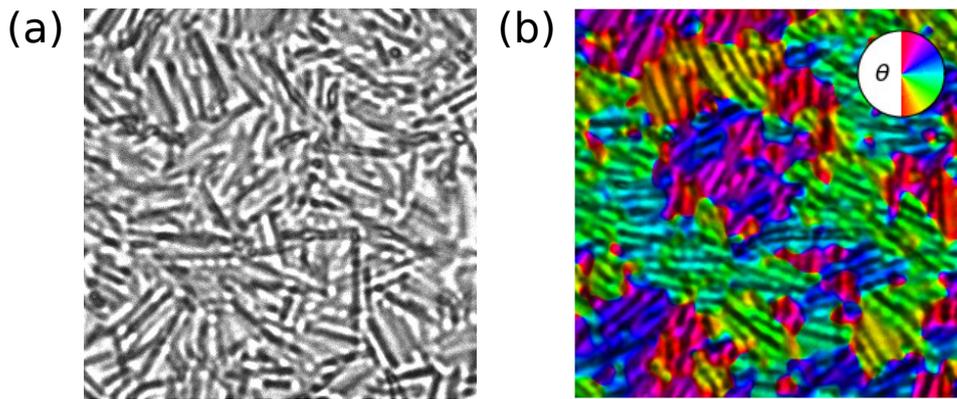


Figure 4.1 – a) Image en champ clair de la phase mobile, b) Orientation de la phase mobile. Les images mesurent $34.5 \mu\text{m}$ de large.

Une caractéristique remarquable mérite d'être soulignée. Les bâtonnets de Quincke en interaction ne sont pas horizontaux et actifs pendant toute la durée de l'expérience. Au lieu de cela, nous constatons qu'une fraction finie de bâtonnets activent et désactivent leur autopropulsion en changeant d'orientation et en pointant dans la direction du champ \mathbf{E} pendant un temps fini. Les bâtonnets immobiles pointant dans la direction du champ électrique sont beaucoup plus brillants que les bâtonnets horizontaux lorsqu'ils sont imagés au moyen de la microscopie par fluorescence, comme le montre la figure 4.2a. Dans la figure 4.2b, nous représentons la fraction Φ_A de bâtonnets verticaux en fonction de la densité de nombre globale ρ_0 . Bien que les taux de transition

4.1. Construction du diagramme de coexistence des phases

α (respectivement β) de l'état mobile (respectivement arrêté) à l'état arrêté (respectivement mobile) ne puissent pas être mesurés individuellement, Φ_A fournit une mesure directe du rapport entre ces deux paramètres cinétiques. On observe une augmentation monotone de ce paramètre avec la densité ρ_0 . Cette observation apparemment banale est au cœur de mon travail : l'activité des bâtonnets de Quincke dépend du nombre local de particules voisines. Ainsi ces particules réalisent ainsi une forme primitive de quorum sensing.

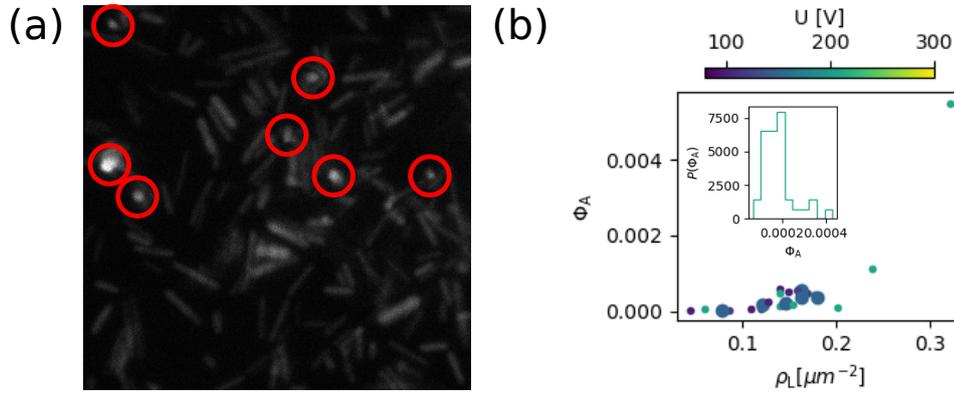


Figure 4.2 – a) Image en fluorescence de la phase mobile. Les cercles rouges soulignent la présence de points blancs, c'est-à-dire des bâtonnets verticaux. b) Variation de la fraction de bâtonnets verticaux avec la densité, et en encart distribution de cette fraction au cours d'une expérience pour une densité et une tension données.

En augmentant ρ_0 , ou en diminuant la tension U , un second comportement émerge. Une fraction finie de bâtonnets passe à l'état d'arrêt, se lève et forme un amas solide et dense sans dynamique interne, voir figures 4.3a et b. Ces amas de particules arrêtées coexistent avec une phase liquide homogène, et nous observons un échange continu de particules à l'interface entre les domaines mobiles et arrêtés, voir figure 4.3c. Sur cette figure, on peut voir un bâtonnet d'abord mobile venir s'arrêter et s'agréger au domaine arrêté, puis basculer pour repartir dans la phase active. Nous avons donc une interface dynamique entre les domaines. L'augmentation de ρ_0 entraîne une augmentation de la fraction de surface de la phase solide arrêtée Φ_S jusqu'au point où toutes les particules perdent leur capacité de propulsion et forment une phase passive macroscopique.

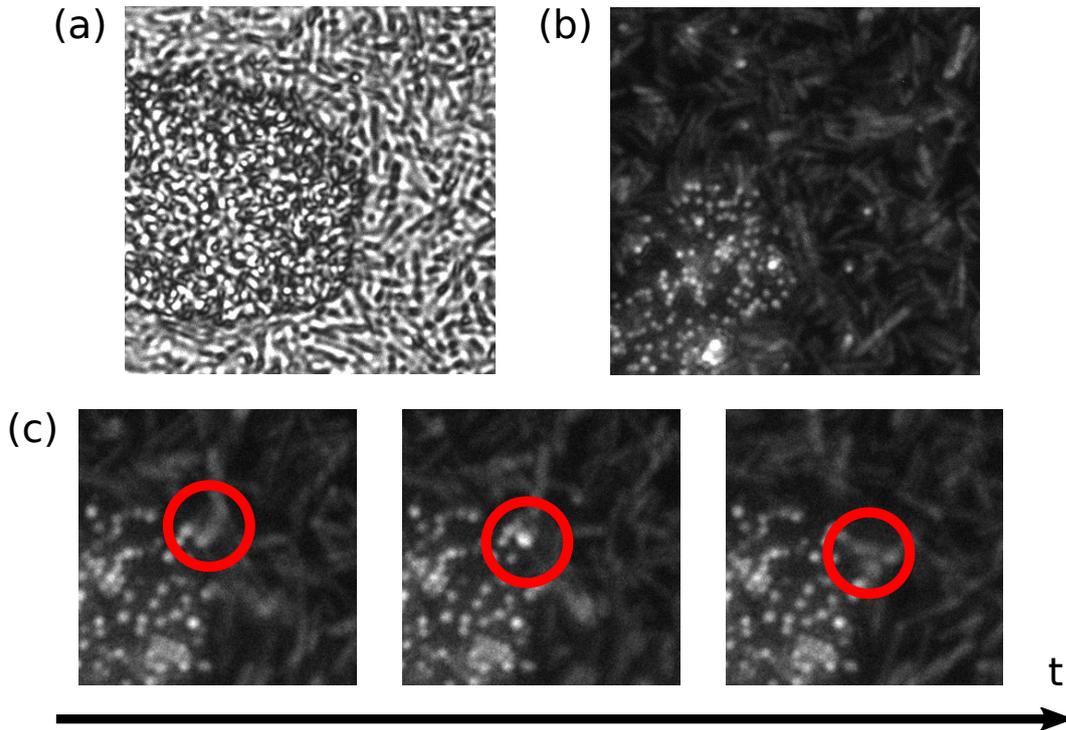


Figure 4.3 – a) Image en champ clair de la coexistence de deux domaines de densité différente. b) Image en fluorescence de la même expérience. La largeur des deux images est $34.5 \mu\text{m}$. On note bien la différence visuelle entre les deux domaines. c) Interface dynamique entre les deux domaines. Avec cette séquence temporelle, on observe un bâtonnet entrer puis sortir de la phase statique. Chaque image fait $17.3 \mu\text{m}$ de large.

Afin de définir plus quantitativement les limites entre ces trois états différents, j'ai tracé les variations de Φ_S en fonction de ρ_0 sur la figure 4.4a. Les deux points de rupture de $\Phi_S(\rho_0)$ définissent les limites des phases. Deux points sont à souligner. Le premier est la limite entre la coexistence et la phase entièrement statique. Ce point est très bien défini car les variations de Φ_S sont presque verticales au début de la solidification complète. Le second est illustré sur la figure 4.4b. Les courbes $\Phi_S(\rho_0)$ mesurées pour différentes valeurs de U peuvent toutes être regroupées sur une seule courbe maîtresse à proximité du début de l'apparition de la phase solide. En répétant plus de 80 expériences différentes, c'est-à-dire en mesurant la fraction de domaine statique pour différentes valeurs de ρ_0 et U , je peux dessiner le diagramme de phase des bâtonnets de Quincke en interaction dans la figure 4.4c. Pour cela, les deux limites relevées

4.1. Construction du diagramme de coexistence des phases

précédemment ont été tracées pour différentes valeurs de tension. Il est à noter que la tension U n'est pas ici à proprement parler le paramètre de contrôle, puisque les interactions entre particules sont également modifiées lorsque la tension est modifiée.

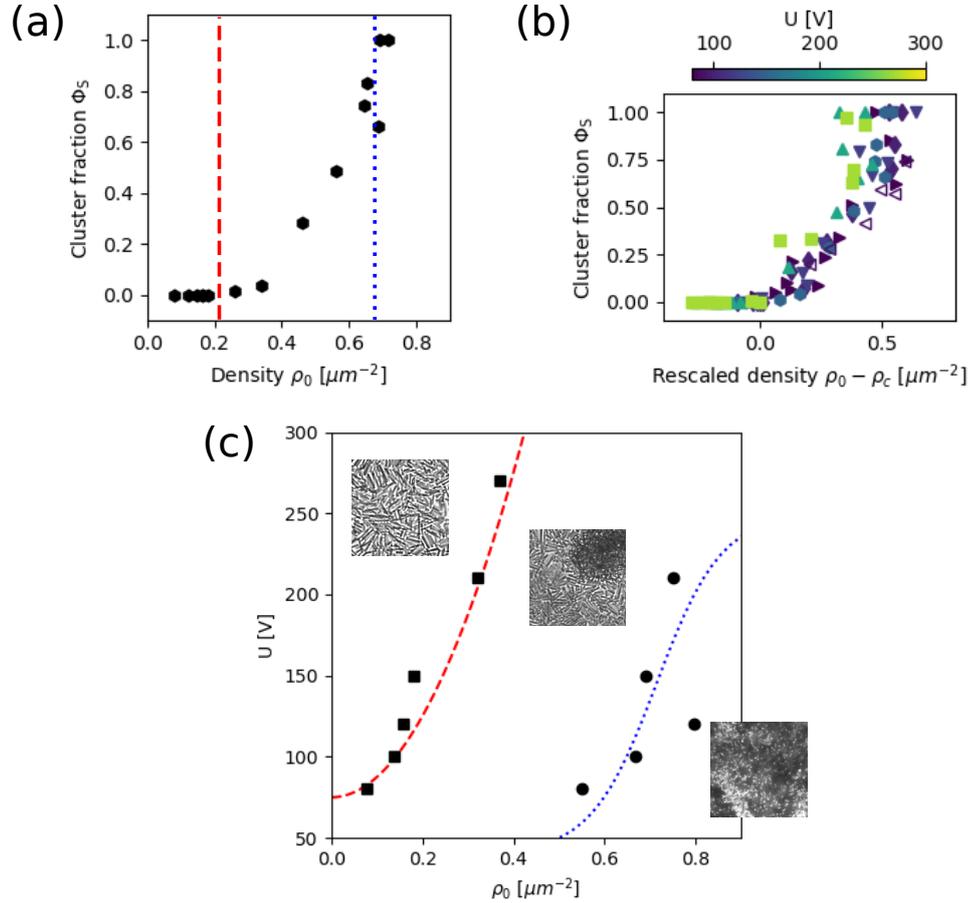


Figure 4.4 – a) Fraction de phase statique Φ_s en fonction de la densité globale ρ_0 pour une tension donnée ($U = 150$ V). Le seuil d'apparition de la phase statique ρ_c est symbolisé par la ligne rouge en pointillés longs, le seuil de disparition de la phase active par la ligne bleue en pointillés courts. b) Superposition des courbes de fraction de phase statique en fonction de la densité réduite par la densité d'apparition de cette phase statique $\rho_0 - \rho_c$. c) Diagramme de phase reprenant chacun des seuils pour les différentes valeurs de tension utilisées. Les lignes en pointillés servent d'aide visuelle.

Maintenant qu'un diagramme de coexistence des phases a été tracé, on peut essayer de comprendre la nature du changement entre ces différents phases. Et

cette première série d'observations laisse entrevoir un véritable scénario de séparation de phases.

4.2 Étude de la transition de phase : nucléation & hystérèse

Pour confirmer l'hypothèse de la séparation de phase, j'ai effectué trois séries de mesures supplémentaires : (i) les variations de densité locale au sein des deux phases coexistantes, (ii) la cinétique d'organisation de la phase solide, et (iii) un test du comportement d'hystérèse en variant périodiquement l'ampleur du champ \mathbf{E} .

Variations de la densité dans chacune des phases

La première mesure pour confirmer l'hypothèse d'une transition de phase est la mesure de la variation de densité dans chacune des phases. Dans la figure 4.5, je trace les variations de la densité moyennée dans l'espace et dans le temps dans les phases liquide et solide (ρ_L et ρ_S respectivement). On constate que ρ_S dépend à peine de la densité moyenne ρ_0 , comme à l'équilibre lorsque la phase solide coexiste avec un liquide. Cependant, contrairement à l'équilibre, la densité de la phase liquide ρ_L continue à augmenter faiblement dans la région de coexistence. Mais les variations de ρ_L présentent une discontinuité de pente claire lorsque le premier amas solide se forme, signalant ainsi sans ambiguïté la coexistence entre les deux phases distinctes. Bien que faibles par rapport à nos résolutions de mesure, ces variations sont observées de manière cohérente pour toutes les valeurs de la tension V . Elles pourraient s'expliquer par des corrélations structurelles ou des interactions à longue portée entre les particules actives que nous ne pouvons pas établir rigoureusement dans nos expériences.

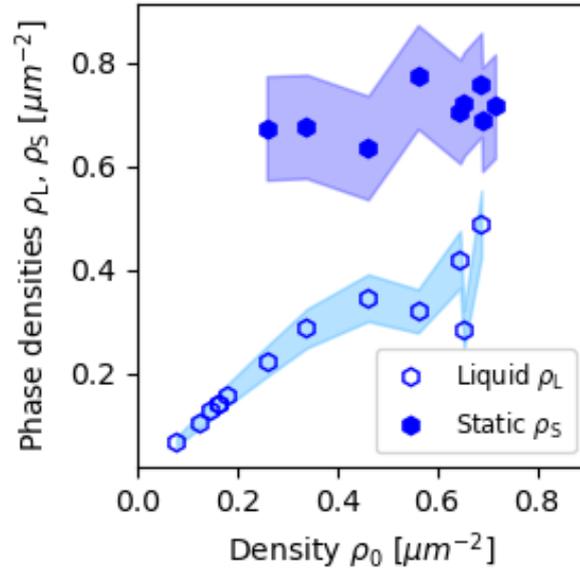


Figure 4.5 – Variations de la densité dans chacune des phases ρ_L et ρ_S en fonction de la densité globale ρ_0 . Les incertitudes sont les écarts-types de la distribution de densité relevée lors de sa mesure (cf. Chap. 3).

Cinétique des phases solides

Une deuxième mesure pour mettre à l'épreuve l'hypothèse de transition de phase est l'observation et la mesure de la croissance de la phase solide pour différentes variations du champ électrique. Afin de quantifier la cinétique de croissance de la phase solide, je procède comme suit. Je prépare le système dans la phase liquide à différentes valeurs de ρ_0 et fixe $U = 210 \text{ V}$ ou $U = 275 \text{ V}$. Je réduis ensuite lentement la valeur de la tension appliquée en dessous de la ligne de coexistence jusqu'à ce qu'un premier amas solide se forme, voir figure 4.4c. Je maintiens ensuite la valeur de U inchangée et mesure les variations de la surface de l'amas solide $R^2(t)$ au cours du temps. Ces variations sont illustrées et tracées sur les figures 4.6a et 4.6b.

En répétant les mêmes expériences 8 fois, nous constatons que la cinétique de croissance est cohérente avec une cinétique $R(t) \sim t^{1/3}$. Ce comportement d'échelle est typique d'une dynamique de nucléation et de croissance à la fois

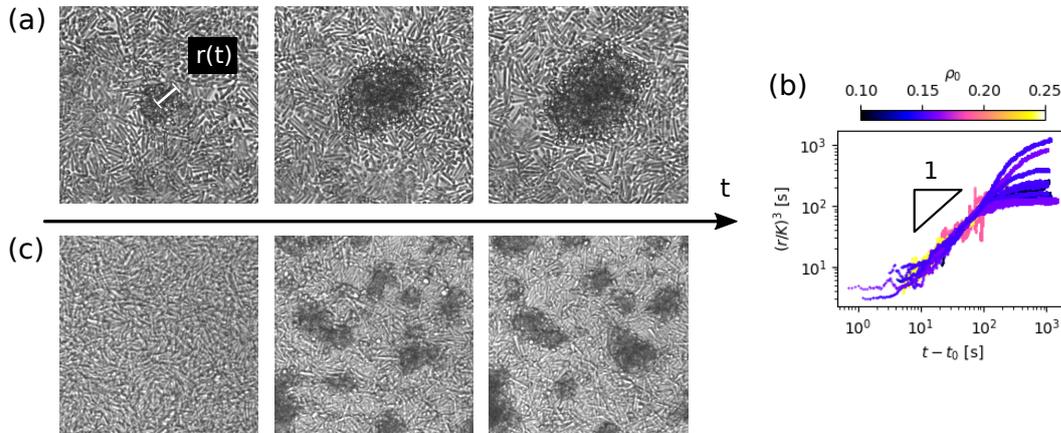


Figure 4.6 – a) Séquence d’image montrant la nucléation et la croissance d’une zone statique lorsque la tension est baissée lentement puis maintenue constante à l’apparition de la zone statique. b) Rayon de la zone statique en fonction du temps pour plusieurs densités. c) Séquence d’image de la séparation de phase lorsque la tension est baissée instantanément. Toutes les images mesurent $51.75 \mu\text{m}$ de large.

dans les séparations de phases à l’équilibre [31] et dans les simulations numériques de séparations de phases induites par la motilité [36]. Pour aller plus loin, il est envisageable d’étudier la taille d’apparition de ces domaines stables pour obtenir une estimation du rayon critique de nucléation et donc de la tension de surface en jeu.

En répétant les mêmes expériences, mais en abaissant rapidement la tension de motorisation, le système s’arrête dans la région de coexistence, et j’observe un modèle nettement différent, illustré sur la figure 4.6c. La forme finale de la phase arrêtée ne consiste pas en un seul amas solide, mais forme au contraire plusieurs domaines séparés par une phase différente. Ce deuxième scénario reflète le début d’un schéma de décomposition spinodale observé dans les systèmes en équilibre [31]. Dans ce cas, la phase homogène est déstabilisée dès le changement de la tension, et la séparation de phase se produit partout à toute petite échelle avant que les domaines ne croissent.

Hystérèse

Enfin un dernier outil pour caractériser une transition de phase est l'étude de métastabilité par l'observation d'un cycle d'hystérèse. Un test robuste de métastabilité d'une phase consiste à étudier la réponse oscillatoire d'un système à la frontière séparant deux phases distinctes. Ici, nous préparons le système à une densité $\rho_0 = 0.18 \mu\text{m}^{-2}$ et appliquons une tension constante $U = 270 \text{ V}$ jusqu'à ce qu'un état stable soit atteint dans la phase liquide homogène. Nous appliquons des modulations triangulaires périodiques de V , d'amplitude $\Delta U = 190 \text{ V}$, et mesurons la fraction surfacique de la phase statique. Nous répétons la même expérience à différentes vitesses et traçons sur la figure 4.7a la valeur instantanée de $\Phi_S(t)$ en fonction de $U(t)$. La figure 4.7b montre les séries temporelles correspondantes. Nous constatons un comportement d'hystérèse sans ambiguïté sur une plage de périodes de modulation allant de 20 s à 300 s. En effet, la phase solide disparaît plus tardivement qu'elle n'apparaît. Lorsque la tension diminue, la phase liquide et homogène est métastable, elle reste donc présente plus longtemps. Au contraire, lorsque la tension remonte, la phase solide juste formée est métastable à son tour et donc met plus de temps avant de disparaître.

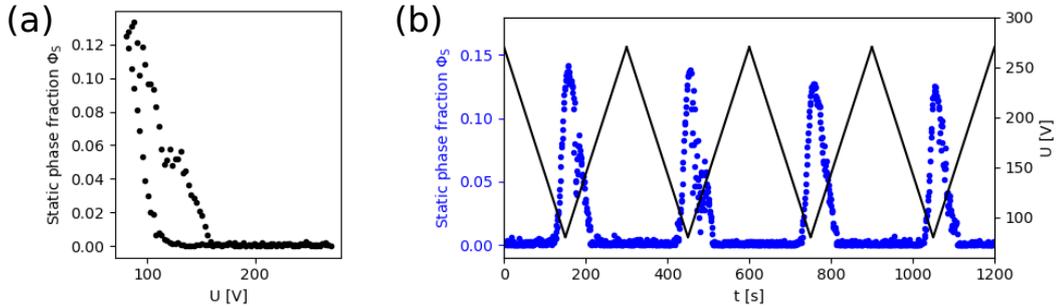


Figure 4.7 – a) Courbe d'hystérèse lors de la variation cyclique de la tension. b) Séquence temporelle de la tension et de la fraction de phase statique.

Il est à noter qu'on n'observe pas de palier à basse tension. Cette absence s'explique notamment par les limitations expérimentales de notre système. En effet, il n'est pas possible de diminuer plus la tension, sous peine de voir tous les bâtonnets s'arrêter, y compris en position horizontale, comme mentionné dans le chapitre sur l'effet Quincke.

Dans l'ensemble, nos trois observations confirment notre hypothèse : le comportement de la phase résumé dans la Fig 4.4h résulte d'une véritable séparation de phase entre un liquide actif et une phase solide passive. Je vais maintenant exposer quelques éléments qui permettent d'expliquer cette séparation de phase.

4.3 Une transition de phase induite par la motilité ?

D'après ce que je viens d'exposer dans la partie précédente, nous observons bien une séparation de phase dans mon système, qui est un matériau actif. Est-il possible que nous soyons en présence d'une séparation de phase induite par la motilité ?

La première chose à noter est l'absence d'ordre orientationnel à longue portée. Ensuite les particules se déplaçant sur un substrat, nous sommes dans un cas typique de matière active sèche où l'impulsion n'est pas conservée. Ainsi la seule quantité conservée est la densité totale de bâtonnets. Et aucun mode mou hydrodynamique associé à cette quantité n'est observé, c'est-à-dire aucune variation périodique. Par conséquent, la seule variable hydrodynamique est la densité, et en dépit de l'anisotropie des particules elle suit la loi suivante à grande échelle :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0 ,$$

où \mathbf{j} est le flux de particules. Il s'agit tout simplement de la loi de conservation de la matière.

Pour répondre par l'affirmative à la question de la séparation de phase induite par la motilité, il faudrait donc être en mesure de justifier que l'activité des bâtonnets diminue avec la densité. Pour cela, je vous propose une explication qualitative de ce phénomène, en revenant dans un premier temps à la dynamique individuelle des bâtonnets. Comme cela a été exposé dans le chapitre 2, le seuil à partir duquel un bâtonnet est stable dans les deux états

4.3. Une transition de phase induite par la motilité ?

s'écrit

$$E_{\perp 1}^2 = -2\mu V \frac{a_{\parallel}^2 + a_{\perp}^2}{\epsilon_1 \tau_{\parallel} (a_{\parallel}^2 n_{\parallel} + a_{\perp}^2 n_{\perp}) (\chi_{\parallel}^0 - \chi_{\perp}^{\infty})}.$$

Il est important de noter ici que ce seuil est proportionnel à $\sqrt{\mu}$ où μ est la viscosité, autrement dit la friction ressentie par le bâtonnet. Ainsi, lorsque la densité augmente, la distance entre bâtonnets diminue et la probabilité d'un choc augmente, ce qui se traduit par une augmentation de la friction ressentie par le bâtonnet. Ce principe est illustré dans la figure 4.8. Par conséquent, le seuil effectif de stabilité de l'état de rotation augmente, allant jusqu'à déstabiliser complètement cet état pour une même valeur de champ électrique. Si la position en rotation est déstabilisée, cela signifie que la particule reste dans un état passif. Son activité a donc diminué. En résumant cette explication, lorsque la densité augmente, l'activité des bâtonnets diminue. Pour aller un peu plus loin, au delà d'une densité critique ρ^* , la vitesse des bâtonnets diminue pour devenir quasiment nulle, la condition $v'(\rho) < -\frac{v(\rho)}{\rho}$ pour avoir MIPS est donc vérifiée. Nous avons donc ici une réalisation expérimentale d'un quorum sensing avec l'activité des particules qui change avec l'environnement de ces particules. Et ce quorum sensing est la motivation de la première étude de MIPS en dimension 1 [26]. Nous avons donc l'ingrédient principal permettant d'expliquer une séparation de phase induite par la motilité.

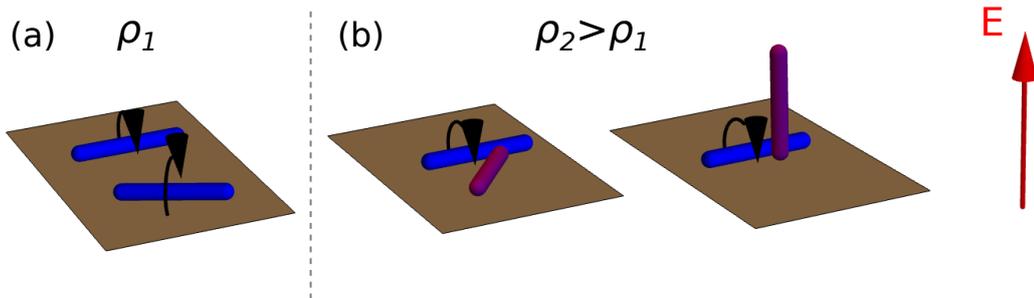


Figure 4.8 – Illustration de la diminution de l'activité avec la densité. a) À faible densité, les deux bâtonnets sont éloignés et n'interagissent pas. Ils roulent librement b) À plus forte densité, les bâtonnets se rapprochent et finissent par se toucher. Lorsque les bâtonnets se touchent, ils ressentent une friction plus forte et peuvent s'arrêter (bâtonnet violet).

Pour être plus quantitatif et avoir une image plus précise de ce phénomène, on peut s'intéresser aux quantités de particules actives et passives dans chacune

des phases. Ainsi il est possible d'écrire les équations de conservation de ces deux quantités en y ajoutant un taux d'échange entre états, et par exemple de quantifier ces taux d'échanges. Une première étape vers cette mesure est donnée dans la figure 4.2b avec la quantité de bâtonnets arrêtés en fonction de la densité globale dans la phase active. Ceci est l'objet d'une collaboration en cours avec Julien Tailleur et Alberto Dinelli et sera présenté lors de ma soutenance de thèse. [54]. Les premières simulations de cette expérience et l'analyse théorique qui en découle ont mis en évidence l'existence d'une phase absorbante, c'est-à-dire qu'avec les bonnes conditions, l'ensemble des bâtonnets vont se rassembler dans une seule phase, quitte à ce que cette phase n'emplisse pas entièrement l'espace. Cette phase absorbante est donc un autre mécanisme de ségrégation de phase, et reste à être exploré expérimentalement.

Conclusion et perspectives

Dans les travaux de thèse que je viens d'exposer, j'ai présenté la première réalisation expérimentale d'une détection de quorum synthétique. Cette détection de quorum provient du comportement individuel propre à chaque particule et ne fait pas intervenir d'opérateur extérieur. Sous l'effet de ce quorum sensing, une assemblée dense de bâtonnets motorisés par l'effet Quincke exhibe une séparation de phase, marquée par un comportement d'hystérèse et un phénomène de nucléation-croissance lors de la diminution lente de l'activité. Un ensemble d'expériences a permis de tracer le diagramme de phase visible sur la figure 4.9. Cette séparation de phase peut être expliquée qualitativement comme étant induite par la motilité.

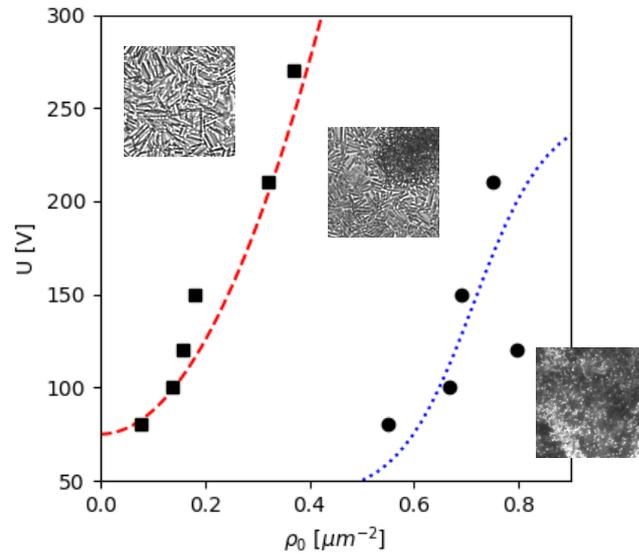


Figure 4.9 – Diagramme de phase des bâtonnets de Quincke. A forte tension et faible densité, on observe une phase mobile dans laquelle les bâtonnets sont horizontaux. A forte densité et faible tension, on observe une phase arrêtée, dans laquelle les bâtonnets sont verticaux. Entre les deux (lignes rouge et bleue), on observe une coexistence des deux phases.

Cette démonstration expérimentale s’appuie sur l’analyse théorique du comportement des bâtonnets de Quincke, qui permet d’expliquer leur bistabilité. Les questions qui restent ouvertes à la suite de ces premiers travaux sont donc de deux ordres. Le premier concerne l’analyse théorique, et le second la séparation de phase observée expérimentalement. Au sujet de l’analyse théorique, la première question est de savoir s’il est possible de développer cette analyse pour d’abord estimer les taux de transitions entre état passif et état actif, puis mesurer expérimentalement ces taux. On pourra étudier l’évolution de ces taux de transition en fonction de la densité, mais également en fonction de la structure locale de l’assemblée de bâtonnets, ou du rapport d’aspect des bâtonnets. Il est envisageable d’exploiter l’impression 3D pour répondre à cette dernière question. Ce développement de l’analyse permettrait d’avoir par la suite une image plus quantitative de la décroissance de l’activité avec la densité pour expliquer la détection de quorum.

Dans cette perspective de mieux comprendre le quorum sensing, une autre question se pose du point de vue expérimental : Est-il possible de moduler la

4.3. Une transition de phase induite par la motilité ?

baisse d'activité observée dans ces travaux de thèse ? En effet, dans les travaux présentés ici, les particules passent d'un état actif à un état passif, c'est-à-dire d'activité nulle, lorsque la densité augmente. Dans le cas de particules naturelles comme les bactéries *Myxococcus xanthus*, leur activité n'est pas nulle à forte densité [28]. Ce comportement individuel impacte la dynamique collective. Après la croissance des phases denses jusqu'à une taille critiques, ces domaines finissent par fusionner en formant ce qui est appelé des corps de mûrissement [28], voir figure 4.10. Ainsi avec la possibilité de la modulation de l'activité viennent les questions suivantes : Si cela est possible, le comportement de l'assemblée de particules actives synthétique reste-t-il identique à celui observé dans les travaux que je viens de présenter ? Peut-t-on obtenir de nouveaux comportements comme l'apparition de corps de mûrissement ?

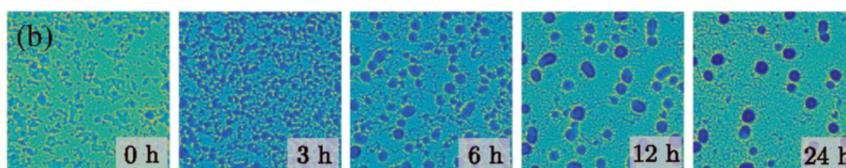


Figure 4.10 – Séquence d'image montrant la formation de corps de mûrissement pour les bactéries *Myxococcus xanthus*, les zones denses finissent par fusionner [28]. La couleur code pour la densité.

Pour les questions concernant la séparation de phase expérimentale, les résultats présentés ici se limitent aux propriétés de volume des phases. Par exemple, la mesure de la fraction de domaine statique ne donne aucune information sur la taille de ces domaines. La question de la dynamique n'a pas été abordée. Comment se comportent les interfaces entre domaines au cours du temps ? Est-il possible de définir une tension de surface effective entre les domaines statiques et les domaines mobiles, comme l'on fait Omar *et al.* pour des simulations [55] ? Plusieurs pistes sont envisageables pour réaliser cette mesure comme l'étude de la dynamique des interfaces pour un jeu de paramètres donnés, ou encore celle du rayon critique de nucléation dans le cas de la diminution progressive du paramètre de contrôle.

Certains éléments restent surprenants dans ces expériences. Ces éléments concernent l'ordre à longue portée de l'assemblée de particules. Chaque bâtonnet est caractérisé par 2 orientations, celle de son axe principal et celle de sa vitesse. Pour chacune d'elles, il est possible d'obtenir une organisation spatiale à longue portée, autrement dit un alignement. Et pour chacune d'elles, un élément surprenant est apparu lors des manipulations. Le premier élément surprenant concerne l'arrangement de la vitesse des bâtonnets, qui se traduit par leur comportement collectif en phase diluée. De manière individuelle, les bâtonnets se déplacent de manière similaire aux rouleurs de Quincke isotropes comme nous le voyons sur la figure 4.11. Chez les rouleurs sphériques, lorsque la densité augmente, les vitesses des particules s'alignent. On observe un écoulement spontané avec un ordre à longue portée ou *flocking* [15]. Pourtant, nous n'observons pas ce genre de comportement avec les bâtonnets. Ainsi, soit la forme anisotrope des particules, soit les interactions entre bâtonnets ainsi qu'entre bâtonnet et substrat suppriment le flocking. Les questions qui émergent sont donc les suivantes : est-il possible de comprendre analytiquement pourquoi le flocking a disparu ? Est-il possible expérimentalement de modifier les interactions entre bâtonnets ou avec le substrat pour retrouver ce flocking ? S'il est possible de répondre à ces questions, il est envisageable pour aller plus loin de déterminer analytiquement les propriétés hydrodynamiques de ce fluide actif et de les mesurer, tel que l'on fait Bricard *et al.* [15] et Geyer *et al.* [16].

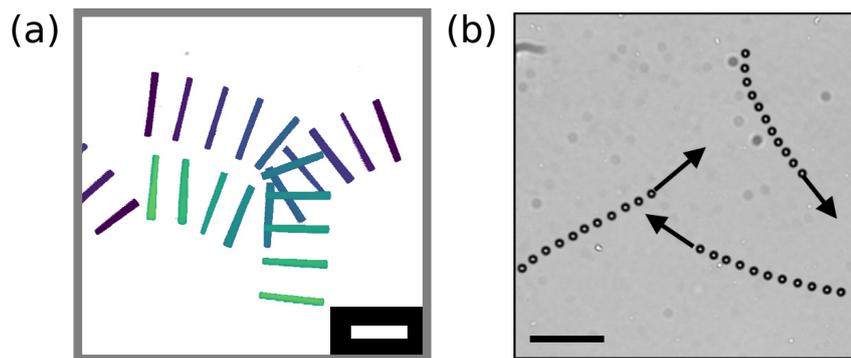


Figure 4.11 – Superposition d'images pour des particules soumises à l'effet Quincke a) anisotropes, b) isotropes. Pour les particules anisotropes, la barre d'échelle mesure $34.5 \mu\text{m}$, et l'intervalle de temps entre chaque image est 0.32 s . Pour les particules isotropes, la barre d'échelle mesure $50 \mu\text{m}$, et l'écart entre chaque image est de 15 ms .

4.3. Une transition de phase induite par la motilité ?

Le second élément surprenant concerne l'orientation des bâtonnets. En effet, dans une autre série de manipulations, j'ai procédé de manière différente pour réaliser cette expérience : la géométrie du canal est différente, avec un canal droit plutôt qu'en forme de V ; j'ai fait un rinçage préliminaire supplémentaire avec la solution d'héxadécane - AOT ; et j'ai positionné le canal verticalement plutôt qu'à 60 deg pour créer le gradient de densité en bâtonnets. J'ai observé dans cette série d'expériences un alignement à moyenne portée des bâtonnets. Cet alignement est dynamique, comme illustré sur la figure 4.12. La prochaine étape concernant ce sujet est donc de comprendre la physique en jeu à l'échelle microscopique qui permet d'expliquer l'observation d'une telle phase ordonnée sous des conditions spécifiques, par exemple au niveau des mouvements de charges à l'interface du canal ainsi que dans le solvant. Ensuite, comment cette observation se compare-t-elle à d'autres expériences où des phases nématiques actives sont apparues [23]. Pour des champs d'orientation, on définit un défaut topologique comme un point d'annulation (de non-définition) de cette orientation. Il s'agit typiquement d'un point de rencontre entre différents domaines d'orientation différente. Dans les fluides actifs, ces défauts peuvent se déplacer sous l'effet du mouvement des particules. Ils sont soumis à deux effets : l'écoulement (ou non) autour des défauts qui les met en mouvement (ou pas) [23], et l'écoulement de particules de Quincke, qui agit comme une force de propulsion locale et tend à supprimer les défauts topologiques [56]. Ainsi, la question se pose de savoir quel est l'effet prédominant, et par conséquent comment la structure spatio-temporelle de notre système est conservée.

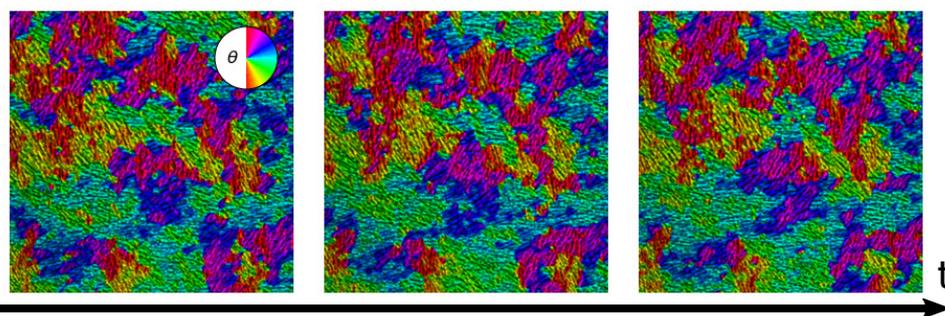


Figure 4.12 – Séquence d'image de l'orientation d'une assemblée de bâtonnets. Chaque image fait 103.5 μm de large. L'intervalle de temps entre chaque image est 0.5 s.

Pour finir, on note dans les domaines les plus denses que les particules ne

sont par sur une seule couche, mais en forment plusieurs. Ainsi, les particules ont commencé à explorer la troisième dimension. Une perspective possible est donc l'étude complète de cette troisième dimension. En effet, lorsqu'ils sont passifs, les bâtonnets colloïdaux forment des phases nématiques (l'orientation des bâtonnets est similaire) ou smectiques (leur orientation est similaire et les positions des bâtonnets sont organisés périodiquement) à haute densité [51]. Une telle phase nématique en volume est présentée sur la figure 4.13. Ces phases sont-elles conservées lorsque nous activons les particules ? Observe-t-on des écoulements spontanés en 3 dimensions comme cela a été fait expérimentalement avec des microtubules [57] ? Ou bien les deux états des bâtonnets (statique parallèle au champ électrique et en rotation perpendiculaire au champ électrique) étant toujours accessibles, observe-t-on une séparation de phase en 3 dimensions ?

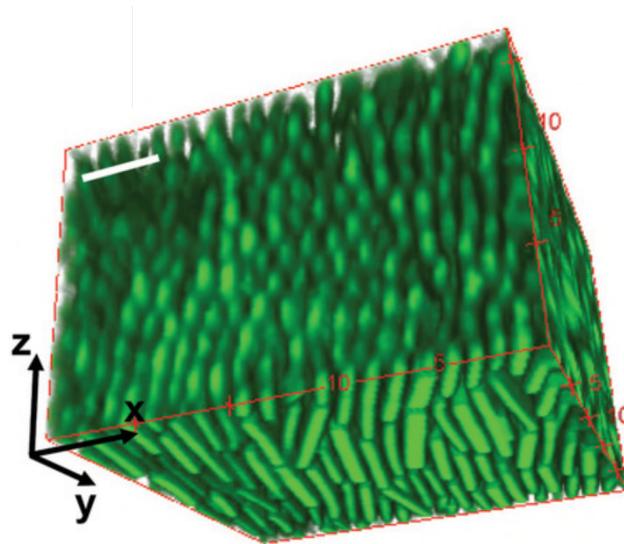


Figure 4.13 – Image confocale en 3 dimensions ($20 \times 20 \times 17 \mu\text{m}^3$) d'une phase nématique de bâtonnets de SU8 fluorescent dans de la tétrahydronaphthaline [51]. La barre d'échelle mesure $10 \mu\text{m}$.

Bibliographie

- [1] M. Moussaïd, E. G. Guilloit, M. Moreau, J. Fehrenbach, O. Chabiron, S. Lemerrier, J. Pettré, C. Appert-Rolland, P. Degond, and G. Theraulaz, “Traffic Instabilities in Self-Organized Pedestrian Crowds,” *PLoS Computational Biology*, vol. 8, p. e1002442, 3 2012. (Cité page 1.)
- [2] T. Vicsek, A. Czirak, E. Ben-Jacob, I. Cohen, and O. Shochet, “Novel Type of Phase Transition in a System of Self-Driven Particles,” *Physical Review Letters*, vol. 75, p. 1226, 8 1995. (Cité pages 2 and 3.)
- [3] J. Toner and Y. Tu, “Long-Range Order in a Two-Dimensional Dynamical XY Model : How Birds Fly Together,” *Physical Review Letters*, vol. 75, p. 4326, 12 1995. (Cité pages 2 and 3.)
- [4] M. C. Marchetti, J. F. Joanny, S. Ramaswamy, T. B. Liverpool, J. Prost, M. Rao, and R. A. Simha, “Hydrodynamics of soft active matter,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 85, pp. 1143–1189, 7 2013. (Cité pages 2 and 3.)
- [5] L. Gómez-Nava, R. Bon, and F. Peruani, “Intermittent collective motion in sheep results from alternating the role of leader and follower,” *Nature Physics* 2022 18 :12, vol. 18, pp. 1494–1501, 10 2022. (Cité page 3.)
- [6] J. Deseigne, S. Léonard, O. Dauchot, and H. Chaté, “Vibrated polar disks : spontaneous motion, binary collisions, and collective dynamics,” *Soft Mat-*

BIBLIOGRAPHIE

- ter, vol. 8, no. 20, p. 5629, 2012. (Cité pages 3 and 4.)
- [7] S. Farhadi, S. Machaca, J. Aird, B. O. Torres Maldonado, S. Davis, P. E. Arratia, and D. J. Durian, “Dynamics and thermodynamics of air-driven active spinners,” *Soft Matter*, vol. 14, pp. 5588–5594, 7 2018. (Cité page 3.)
- [8] S. Thutupalli, R. Seemann, and S. Herminghaus, “Swarming behavior of simple model squirmers,” *New Journal of Physics*, vol. 13, p. 073021, 7 2011. (Cité pages 3 and 4.)
- [9] S. Herminghaus, C. C. Maass, C. Krüger, S. Thutupalli, L. Goehring, and C. Bahr, “Interfacial mechanisms in active emulsions,” *Soft Matter*, vol. 10, pp. 7008–7022, 8 2014. (Cité page 3.)
- [10] S. Thutupalli, D. Geyer, R. Singh, R. Adhikari, and H. A. Stone, “Flow-induced phase separation of active particles is controlled by boundary conditions,” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, vol. 115, pp. 5403–5408, 5 2018. (Cité page 3.)
- [11] J. Yan, M. Han, J. Zhang, C. Xu, E. Luijten, and S. Granick, “Reconfiguring active particles by electrostatic imbalance,” *Nature Materials 2016 15 :10*, vol. 15, pp. 1095–1099, 7 2016. (Cité page 3.)
- [12] J. Palacci, C. Cottin-Bizonne, C. Ybert, and L. Bocquet, “Sedimentation and effective temperature of active colloidal suspensions,” *Physical Review Letters*, vol. 105, p. 088304, 8 2010. (Cité page 3.)
- [13] J. Palacci, S. Sacanna, A. P. Steinberg, D. J. Pine, and P. M. Chaikin, “Living crystals of light-activated colloidal surfers,” *Science*, vol. 339, pp. 936–940, 2 2013. (Cité page 3.)
- [14] F. Ginot, I. Theurkauff, D. Levis, C. Ybert, L. Bocquet, L. Berthier, and C. Cottin-Bizonne, “Nonequilibrium Equation of State in Suspensions of Active Colloids,” *Physical Review X*, vol. 5, p. 011004, 1 2015. (Cité pages 3 and 4.)
- [15] A. Bricard, J.-B. Caussin, N. Desreumaux, O. Dauchot, and D. Bartolo, “Emergence of macroscopic directed motion in populations of motile colloids,” *Nature*, vol. 503, p. 95, 11 2013. (Cité pages 3, 4, 21, and 64.)
- [16] D. Geyer, A. Morin, and D. Bartolo, “Sounds and hydrodynamics of polar active fluids,” *Nature materials*, vol. 17, no. 9, p. 789, 2018. (Cité pages 3 and 64.)

-
- [17] Q. Brosseau, G. Hickey, and P. M. Vlahovska, “Electrohydrodynamic Quincke rotation of a prolate ellipsoid,” *Physical Review Fluids*, vol. 2, p. 014101, 1 2017. (Cité pages 3, 23, and 32.)
- [18] G. Duclos, S. Garcia, H. G. Yevick, and P. Silberzan, “Perfect nematic order in confined monolayers of spindle-shaped cells,” *Soft Matter*, vol. 10, no. 14, pp. 2346–2353, 2014. (Cité page 5.)
- [19] T. H. Tan, A. Mietke, J. Li, Y. Chen, H. Higinbotham, P. J. Foster, S. Gokhale, J. Dunkel, and N. Fakhri, “Odd dynamics of living chiral crystals,” *Nature 2022 607 :7918*, vol. 607, pp. 287–293, 7 2022. (Cité page 5.)
- [20] C. Blanch-Mercader, V. Yashunsky, S. Garcia, G. Duclos, L. Giomi, and P. Silberzan, “Turbulent Dynamics of Epithelial Cell Cultures,” *Physical Review Letters*, vol. 120, p. 208101, 5 2018. (Cité page 5.)
- [21] H. P. Zhang, A. Be’er, E. L. Florin, and H. L. Swinney, “Collective motion and density fluctuations in bacterial colonies,” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, vol. 107, pp. 13626–13630, 8 2010. (Cité page 5.)
- [22] H. Wioland, F. G. Woodhouse, J. Dunkel, J. O. Kessler, and R. E. Goldstein, “Confinement Stabilizes a Bacterial Suspension into a Spiral Vortex,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, no. 26, p. 268102, 2013. (Cité page 5.)
- [23] S. J. DeCamp, G. S. Redner, A. Baskaran, M. F. Hagan, and Z. Dogic, “Orientational order of motile defects in active nematics,” *Nature Materials*, vol. 14, no. 11, pp. 1110–1115, 2015. (Cité pages 5, 6, and 65.)
- [24] V. Schaller, C. Weber, C. Semmrich, E. Frey, and A. R. Bausch, “Polar patterns of driven filaments,” *Nature*, vol. 467, no. 7311, p. 73, 2010. (Cité page 5.)
- [25] M. B. Miller and B. L. Bassler, “Quorum Sensing in Bacteria,” *Annual Review of Microbiology*, vol. 55, pp. 165–199, 10 2001. (Cité page 6.)
- [26] J. Tailleur and M. E. Cates, “Statistical Mechanics of Interacting Run-and-Tumble Bacteria,” *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 218103, 5 2008. (Cité pages 6, 14, 16, and 59.)
- [27] A. I. Curatolo, N. Zhou, Y. Zhao, C. Liu, A. Daerr, J. Tailleur, and J. Huang, “Cooperative pattern formation in multi-component bacterial systems through reciprocal motility regulation,” *Nature Physics 2020 16 :11*, vol. 16, pp. 1152–1157, 8 2020. (Cité pages 6, 17, and 18.)

BIBLIOGRAPHIE

- [28] G. Liu, A. Patch, F. Bahar, D. Yllanes, R. D. Welch, M. C. Marchetti, S. Thutupalli, and J. W. Shaevitz, “Self-Driven Phase Transitions Drive *Myxococcus xanthus* Fruiting Body Formation,” *Physical Review Letters*, vol. 122, p. 248102, 6 2019. (Cité pages 6, 7, and 63.)
- [29] E. Cristiani, B. Piccoli, and A. Tosin, *Multiscale Modeling of Pedestrian Dynamics*, vol. 12. Cham : Springer International Publishing, 2014. (Cité page 7.)
- [30] M. Doi, *Soft Matter Physics*. Oxford University Press, 2013. (Cité pages 8, 10, and 12.)
- [31] A. J. Bray, “Theory of phase-ordering kinetics,” <http://dx.doi.org/10.1080/00018730110117433>, vol. 51, pp. 481–587, 3 2010. (Cité pages 12 and 56.)
- [32] M. E. Cates and J. Tailleur, “Motility-Induced Phase Separation,” <https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-031214-014710>, vol. 6, pp. 219–244, 3 2015. (Cité pages 12, 15, and 16.)
- [33] H. Karani, G. E. Pradillo, and P. M. Vlahovska, “Tuning the Random Walk of Active Colloids : From Individual Run-and-Tumble to Dynamic Clustering,” *Physical Review Letters*, vol. 123, p. 208002, 11 2019. (Cité page 13.)
- [34] M. J. Schnitzer, “Theory of continuum random walks and application to chemotaxis,” *Physical Review E*, vol. 48, p. 2553, 10 1993. (Cité page 14.)
- [35] J. Stenhammar, D. Marenduzzo, R. J. Allen, and M. E. Cates, “Phase behaviour of active Brownian particles : the role of dimensionality,” *Soft Matter*, vol. 10, pp. 1489–1499, 2 2014. (Cité pages 16 and 17.)
- [36] A. Patch, D. Yllanes, and M. C. Marchetti, “Kinetics of motility-induced phase separation and swim pressure,” *Physical Review E*, vol. 95, p. 012601, 1 2017. (Cité pages 16 and 56.)
- [37] M. Rein, N. Heinß, F. Schmid, and T. Speck, “Collective Behavior of Quorum-Sensing Run-and-Tumble Particles under Confinement,” *Physical Review Letters*, vol. 116, p. 058102, 2 2016. (Cité page 16.)
- [38] A. P. Solon, M. E. Cates, and J. Tailleur, “Active brownian particles and run-and-tumble particles : A comparative study,” *The European Physical Journal Special Topics 2015 224 :7*, vol. 224, pp. 1231–1262, 7 2015. (Cité page 16.)

-
- [39] A. P. Solon, J. Stenhammar, M. E. Cates, Y. Kafri, and J. Tailleur, “Generalized thermodynamics of phase equilibria in scalar active matter,” *Physical Review E*, vol. 97, p. 020602, 2 2018. (Cité page 17.)
- [40] F. Jose, S. K. Anand, and S. P. Singh, “Phase separation of an active colloidal suspension via quorum-sensing,” *Soft Matter*, vol. 17, pp. 3153–3161, 3 2021. (Cité page 17.)
- [41] M. N. Van Der Linden, L. C. Alexander, D. G. Aarts, and O. Dauchot, “Interrupted Motility Induced Phase Separation in Aligning Active Colloids,” *Physical Review Letters*, vol. 123, p. 098001, 8 2019. (Cité pages 17 and 18.)
- [42] D. Geyer, D. Martin, J. Tailleur, and D. Bartolo, “Freezing a Flock : Motility-Induced Phase Separation in Polar Active Liquids,” *Physical Review X*, vol. 9, p. 031043, 9 2019. (Cité pages 17 and 18.)
- [43] T. Bäuerle, A. Fischer, T. Speck, and C. Bechinger, “Self-organization of active particles by quorum sensing rules,” *Nature Communications 2018 9 :1*, vol. 9, pp. 1–8, 8 2018. (Cité page 17.)
- [44] G. Quincke., “Über Rotationen im constanten electrischen Felde,” *G. Ann. Phys.*, 1896. (Cité page 21.)
- [45] A. Chardac, *Matière active polaire : ordre, désordre et défauts topologiques*. PhD thesis, 12 2021. (Cité page 23.)
- [46] T. B. Jones, *Electromechanics of particles*. Cambridge University Press, 1995. (Cité page 23.)
- [47] A. Cēbers, E. Lemaire, and L. Lobry, “Electrohydrodynamic instabilities and orientation of dielectric ellipsoids in low-conducting fluids,” *Physical Review E*, vol. 63, p. 016301, 12 2000. (Cité pages 23, 31, and 33.)
- [48] Y. Dolinsky and T. Elperin, “Equilibrium orientation of an ellipsoidal particle inside a dielectric medium with a finite electric conductivity in the external field,” *Physical Review E*, vol. 71, 2005. (Cité page 23.)
- [49] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, and L. P. Pitaevskii, *Electrodynamics of Continuous Media*, vol. 8. Librairie du Globe, 1984. (Cité page 24.)
- [50] G. B. Jeffery, “The motion of ellipsoidal particles in a viscous fluid,” *PROCEEDINGS OF THE ROYAL SOCIETY OF LONDON SERIES A-CONTAINING PAPERS OF A MATHEMATICAL AND PHYSICAL CHARACTER*, vol. 102, pp. 161–179, 11 1922. (Cité page 27.)

BIBLIOGRAPHIE

- [51] C. Fernández-Rico, T. Yanagishima, A. Curran, D. G. A. L. Aarts, and R. P. A. Dullens, “Synthesis of Colloidal SU-8 Polymer Rods Using Sonication,” *Advanced Materials*, vol. 31, 4 2019. (Cité pages 35, 36, 41, and 66.)
- [52] C. Fernández-Rico, M. Chiappini, T. Yanagishima, H. de Sousa, D. G. Aarts, M. Dijkstra, and R. P. Dullens, “Shaping colloidal bananas to reveal biaxial, splay-bend nematic, and smectic phases,” *Science*, vol. 369, pp. 960–965, 8 2020. (Cité page 36.)
- [53] J. M. Zwier, G. J. Van Rooij, J. W. Hofstraat, and G. J. Brakenhoff, “Image calibration in fluorescence microscopy,” *Journal of Microscopy*, vol. 216, pp. 15–24, 10 2004. (Cité page 46.)
- [54] T. Lefranc, A. Dinelli, C. Fernandez-Rico, R. Dullens, J. Tailleur, and D. Bartolo, “Quorum sensing in colloidal active matter : ,” *to be submitted*, 2023. (Cité page 60.)
- [55] A. K. Omar, Z.-G. Wang, and J. F. Brady, “Microscopic origins of the swim pressure and the anomalous surface tension of active matter,” *Physical Review E*, vol. 101, p. 012604, 1 2020. (Cité page 63.)
- [56] A. Chardac, L. A. Hoffmann, Y. Poupard, L. Giomi, and D. Bartolo, “Topology-Driven Ordering of Flocking Matter,” *Physical Review X*, vol. 11, p. 031069, 9 2021. (Cité page 65.)
- [57] G. Duclos, R. Adkins, D. Banerjee, M. S. E. Peterson, M. Varghese, I. Kolvin, A. Baskaran, R. A. Pelcovits, T. R. Powers, A. Baskaran, F. Toschi, M. F. Hagan, S. J. Streichan, V. Vitelli, D. A. Beller, and Z. Dogic, “Topological structure and dynamics of three-dimensional active nematics,” *Science*, vol. 367, pp. 1120–1124, 3 2020. (Cité page 66.)

Résumé :

On définit la matière active comme une assemblée de particules capables de transformer à leur échelle l'énergie en mouvement. Les exemples de matière active sont nombreux dans la nature, allant de la colonie de bactérie au troupeau de zèbres en passant par les bancs de poissons et les foules humaines. Malgré ce mouvement perpétuel des individus, il est possible dans certains cas d'observer une séparation de phase, c'est-à-dire la formation de zones définies de densités différentes. Ceci peut s'expliquer par la détection de quorum : les particules tiennent compte de leurs voisines pour ajuster leur activité. Depuis une dizaine d'années, l'ensemble des briques élémentaires de la matière molle (polymères, colloïdes, ...) ont été motorisées pour fabriquer de la matière active en laboratoire. Cependant aucune forme de détection du quorum synthétique n'a été rapportée jusqu'à aujourd'hui.

Dans cette thèse, nous présentons les premiers résultats permettant de montrer la possibilité de créer une forme simple de détection de quorum en laboratoire. Pour cela nous avons choisi comme élément de base un bâtonnet colloïdal. Nous présentons d'abord une analyse théorique expliquant le comportement de bâtonnets actifs. Cette analyse est une extension aux particules anisotropes du phénomène d'électrorotation de Quincke, déjà utilisé pour rendre des sphères actives. Elle permet de mettre en lumière le comportement plus riche des bâtonnets. Puis nous détaillons la démarche expérimentale pour la mise en œuvre concrète de la motorisation de ces colloïdes actifs, qui est au cœur de ces travaux de thèse. Enfin, nous rapportons les résultats obtenus, qui indiquent une première réalisation expérimentale de détection de quorum artificielle, avec notamment l'observation et la caractérisation d'une séparation de phase induite par la motilité conditionnelle des particules.

Abstract :

Active matter is defined as an assembly of particles capable of transforming energy into movement on their own scale. There are many examples of active matter in nature, from a colony of bacteria to a flock of zebras, from school of fishes to human crowds. Despite this perpetual movement of individuals, it is possible in some cases to observe phase separation, i.e. the formation of defined zones of different densities. This can be explained by the detection of quorum : particles take account of their neighbors to adjust their activity. Over the last ten years or so, all the building blocks of soft matter (polymers, colloids, etc.) have been motorized to produce active materials in the laboratory. However, no form of synthetic quorum sensing has yet been reported.

In this thesis, we present the first results demonstrating the possibility of creating a simple form of quorum sensing in the laboratory. For this purpose, we have chosen a colloidal rod as the basic element. We first present a theoretical analysis explaining the behavior of active rods. This analysis is an extension to anisotropic particles of Quincke's electrorotation phenomenon, already used to render spheres active. It sheds light on the richer behavior of rods. We then detail the experimental approach for the concrete implementation of motorization of these active colloids, which is at the heart of this thesis work. Finally, we report on the results obtained, which indicate a first experimental realization of artificial quorum sensing, including the observation and characterization of a phase separation induced by conditional particle motility.