



HAL
open science

Etude expérimentale des phases denses d'un liquide de disques durs actifs

Guillaume Briand

► **To cite this version:**

Guillaume Briand. Etude expérimentale des phases denses d'un liquide de disques durs actifs. Physique [physics]. Université Paris sciences et lettres, 2017. Français. NNT: 2017PSLET040 . tel-02278915

HAL Id: tel-02278915

<https://theses.hal.science/tel-02278915>

Submitted on 4 Sep 2019

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

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

THÈSE DE DOCTORAT

de l'Université de recherche Paris Sciences et Lettres
PSL Research University

Préparée à Ecole Supérieure de Physique et
de Chimie Industrielles
de la ville de Paris

Etude expérimentale des phases denses d'un liquide de disques durs
actifs

École doctorale n°564

PHYSIQUE EN ILE-DE-FRANCE

Spécialité PHYSIQUE

Soutenue par **Guillaume BRIAND**
le 20 décembre 2017

Dirigée par **Olivier Dauchot**
et co-dirigée par **Michael Schindler**

COMPOSITION DU JURY :

Mme Anke Lindner
Université Paris Diderot, Présidente

M Ludovic Berthier
CNRS Université Montpellier, Rapporteur

Mme Cécile Cottin-Bizonne
CNRS Université Lyon, Rapporteur

Mme Kirsten Martens
CNRS Université Grenoble, Membre du jury

M Adrian Daerr
Université Paris Diderot, Membre du jury

M Olivier Dauchot
CNRS ESPCI, Directeur de thèse

M Michael Schindler
CNRS ESPCI, invité

Table des matières

Résumé-Abstract	1
Remerciements	1
1 Introduction	11
1.1 Les états de la matière à l'équilibre	11
1.1.1 Phases d'équilibre : Structure, Dynamique, Mécanique . . .	11
1.1.2 Diagramme des phases : rôles de l'attraction et de la répulsion	12
1.1.3 Dynamique d'équilibre : description effective	13
1.2 La matière active : une matière hors d'équilibre	15
1.2.1 Définition et exemples	15
1.2.2 Transition vers le mouvement collectif	17
1.2.3 Transition de condensation induite par la motilité.	22
1.3 Vers les phases denses de particules actives	26
1.3.1 Systèmes denses actifs : état de l'art à l'automne 2014 . . .	26
1.3.2 Objectifs et déroulé de la thèse	30
2 Système expérimental, modèle et simulations	35
2.1 Dispositif de disques durs vibrés	35
2.1.1 Les disques durs	36
2.1.2 Dispositif de vibration	37
2.1.3 Confinement des disques	38

2.1.4	Protocole expérimental	39
2.2	Acquisition et traitement d'image	43
2.2.1	Dispositif d'acquisition	43
2.2.2	Analyse d'images	43
2.2.3	Suivre les disques au cours du temps	47
2.3	Disques durs polaires et isotropes	49
2.3.1	Caractéristiques des disques dans le cas de nos expériences	52
2.3.2	Conclusion sur le comportement des disques durs polaires	55
2.4	Modélisation du disque dur actif	55
2.4.1	Diagramme des phases à basses densités	58
2.4.2	Conclusion	61
3	Cristallisation de disques durs polaires	63
3.1	Introduction	63
3.2	Cristallisation d'équilibre	66
3.2.1	Une transition gouvernée par l'entropie	66
3.2.2	Résultats numériques récents	68
3.3	Protocole	68
3.3.1	Protocole expérimental	70
3.3.2	Quelques instantanés du système en fonction de la fraction surfacique	70
3.4	Structure	73
3.4.1	Ordre positionnel	73
3.4.2	Triangulation de Delaunay et tessellation de Voronoï, pour une étude plus approfondie de la structure	78
3.4.3	Ordre orientationnel	79
3.4.4	Conclusions sur la structure	87
3.5	Dynamique	89
3.5.1	100 trajectoires individuelles de disques ISO et SPP prises au hasard	89

<i>TABLE DES MATIÈRES</i>	iii
3.5.2 Déplacements quadratiques moyens des disques	91
3.5.3 Relaxation de la structure	94
3.5.4 Fonction de corrélation à quatre points	96
3.5.5 Conclusions sur la dynamique	98
3.6 Vers un liquide de clusters	98
3.6.1 Protocole et définition des clusters	99
3.6.2 Apparition des premiers clusters, tailles des clusters et seuil de percolation	100
3.6.3 Forme et structure des clusters	102
3.6.4 Dynamique de la phase “liquide de clusters”	103
3.6.5 Cinétique des clusters	109
3.7 Conclusion sur la phase	115
4 Défauts topologiques et stabilité	117
4.1 Introduction	117
4.2 L’ordre à deux dimensions	118
4.2.1 Phénoménologie de la transition de Kosterlitz-Thouless	118
4.2.2 Théorie KTHNY de fonte du cristal	120
4.2.3 Défauts topologiques du cristal en dimension deux	120
4.3 Statique et dynamique des défauts	123
4.3.1 Conclusion	127
4.4 Expériences dans un hexagone	129
4.4.1 Défauts et structure	130
4.4.2 Dynamique	136
4.4.3 Simulations numériques	139
4.5 Conclusion	142

5	Dopage	143
5.1	Résultats numériques de M.M.Dijkstra	144
5.2	Interactions SPP joint de grains	146
5.2.1	Dynamique globale du joint de grains	147
5.2.2	Analyse des mécanismes locaux	155
5.2.3	Conclusion	161
5.3	SPP isolés ou regroupés	162
5.3.1	Détente et stagnation de l'enveloppe externe du groupe de SPP	166
5.3.2	Orientations, des SPP qu'ils soient isolés ou groupés	168
5.4	Conclusion	168
6	Mesure de la pression	171
6.1	Introduction	171
6.1.1	Définitions de la pression à l'équilibre thermodynamique	171
6.1.2	Pression mécanique en matière active : théorie et numérique	172
6.1.3	Pression hydrostatique mesurée expérimentalement	173
6.1.4	Plan du chapitre	176
6.2	Méthode expérimentale	177
6.2.1	Paramètres des expériences	178
6.2.2	Mécanique des chaînes utilisées	179
6.2.3	Analyses des images	180
6.3	Mesure de la pression	182
6.3.1	Equilibre mécanique	182
6.3.2	Modèle de polymère à l'équilibre soumis à une force	183
6.4	Expériences avec $N_1 \neq 0$ et $N_2 = 0$	185
6.4.1	Forme de la chaîne en fonction de N_1	185
6.4.2	Recherche d'une équation d'état	185
6.5	Expériences avec $N_1 \neq 0$ et $N_2 \neq 0$	188
6.5.1	Équilibre entre SPP et ISO	188

TABLE DES MATIÈRES

v

6.5.2	Instabilité de la chaîne, avec des SPP de part et d'autre de la chaîne	189
6.6	Conclusion	191
7	Conclusion	193
	Annexes	197

Résumé

Au cours de cette thèse, nous avons réalisé la première étude expérimentale de la cristallisation d'un système de disques polaires vibrés, dont il a été montré qu'il constituait un très bon système modèle de disques durs actifs. Par ailleurs ces disques développent spontanément de l'alignement polaire, qui conduit à l'émergence de mouvements collectifs dans la phase liquide. Qu'advient-il de ce liquide actif lorsque la fraction surfacique atteint des valeurs comparable à la fraction de cristallisation à l'équilibre ? Comment l'émergence de l'ordre cristallin et l'alignement collectif des particules se combinent-ils ?

Dans un premier temps, nous montrons que la transition de cristallisation pour les disques durs polaires diffère totalement de celle des disques durs d'équilibre. Nous observons d'abord une transition de la phase liquide désordonnée, vers une phase dans laquelle les particules s'ordonnent au sein de clusters lesquels, très instables, se fragmentent et s'agrègent sans cesse. Ce « liquide de cluster » au sein duquel structure et dynamique se découplent totalement, reste présent jusqu'à des fractions surfaciques très élevées.

Dans un second temps, nous préparons un cristal parfait à une fraction surfacique proche de celle du packing hexagonal compact. Nous observons une faible gamme de fraction surfacique pour laquelle ce cristal est stable. En deçà, la structure cristalline persiste mais l'ensemble du cristal se met en rotation.

En conclusion, l'activité et l'alignement persistent même aux plus hautes fractions surfaciques. Cependant ceci ne se fait pas au dépend de l'ordre cristallin. Celui-ci s'établit aussi bien à plus haute fraction surfacique qu'à l'équilibre mais il s'accompagne d'un mouvement d'ensemble de la structure, dont la nature dépend de la géométrie du confinement.

Mots-clés — Matière active, cristallisation, disques durs, milieux granulaires, comportements collectifs, études expérimentales.

Abstract

During this thesis, we carried out the first experimental study of the crystallization using a vibrated polar disc system, which has been shown to be a very good model of active hard discs. Moreover, these discs spontaneously develop a polar alignment, which leads to the emergence of collective motion in the liquid phase. What happens to this active liquid when the packing fraction reaches values comparable to the packing fraction of the crystallization at equilibrium? How does the emergence of crystalline order and the alignment between particles combine?

First, we show that the crystallization for polar hard discs is totally different from the one of equilibrium hard discs. We first observe a transition from the disordered liquid phase to a phase in which particles are ordered within clusters which are very unstable, fragmenting and aggregating constantly. This liquid of clusters in which structure and dynamics decouple completely, remains present until very high packing fractions.

In a second step, we prepare a perfect crystal with a packing fraction close to that of the hexagonal compact packing fraction. We observe a small range of packing fractions for which this crystal is remaining stable. Below this, the crystal structure persists but the whole crystal is rotating.

In conclusion, activity and alignment persist even at the highest packing fractions. However, this is not done at the expense of the crystalline order. The latter is established at a packing fraction higher than the one at equilibrium, but it is accompanied by an overall motion of the structure, the nature of which depending on the geometry of the confinement.

Keywords — Active matter, crystallization, hard discs, granular media, collective behaviour, experimental studies.

Remerciements

Faire de la science est une évidence pour moi depuis que je suis collégien, d'abord j'ai rêvé de faire des mathématiques, puis m'est venue l'idée de faire de la physique, pour finalement aller vers de la physique... expérimentale. Heureusement que le chemin entre tous ces domaines est connexe! Pour arriver jusqu'ici je crains d'avoir dû mettre à mal le principe de moindre action, mais j'espère me rattraper dans le futur pour minimiser l'action de ma vie, et ne plus trop dévier du chemin optimal. En fait, ce qui m'a porté vers la voie de la physique fondamentale des disques durs vibrés a d'abord été ma passion pour les mathématiques, puis pour la physique, le temps, la cosmologie, et un article paru dans les clefs du CEA. Ce fameux article m'a fait changer de point de vue sur les mouvements collectifs des sardines et des étourneaux. On y apprend qu'ils appartiennent à la même classe d'universalité que des disques durs polaires vibrés! Je peux maintenant vous confier qu'étudier les disques durs polaires vibrés n'a pas été le leitmotiv de ma scolarité en physique, puisque j'ai étudié la relat'g, la méca q, les champs, les particules, les groupes et les symétries, l'optique, et un petit peu de physique statistique hors d'équilibre, domaine auquel sont rattachés les disques durs polaires vibrés. Pour en arriver à travailler sur ce sujet précis, j'ai d'abord fait la rencontre à l'Université de Guillaume Grégoire, un des investigateurs des mouvements collectifs, auprès de qui j'ai fait mon stage de Master. N'ayant pas pu obtenir de financement pour étudier numériquement les barchanes (des dunes en forme de croissant de lune) avec lui, je me suis mis à la recherche d'un autre sujet de thèse. J'ai alors pris connaissance d'une proposition faite par Ludovic Berthier (je suis un grand fan, j'aurais voulu lui demander un autographe sur l'un de ses articles, mais j'ai finalement obtenu sa signature sur le compte-rendu du jury, c'est la classe aussi), dans laquelle il expliquait ce qu'était la transition vitreuse (le passage d'un état liquide à un état vitreux) et donc l'intérêt que nous avons à l'étudier. Et là, deuxième évidence, après les mouvements collectifs d'étourneaux, je me suis projeté dans l'idée d'étudier la transition vitreuse, et exclusivement celle-ci. On ne m'en avait, je crois, jamais parlé, mais ces quelques lignes avaient suffi à me faire rêver. J'ai alors continué à chercher un sujet, et parmi les 300 sujets proposés au sein de l'ED Pif, un m'a attiré : "la transition vitreuse et de jamming des disques durs polaires vibrés". Incroyable! Le sujet taillé pour moi, sujet proposé par Olivier Dauchot. Ahaha, ces mêmes disques dont traitait l'article que j'avais

lu 5 ans plus tôt, et qui m'avaient déjà inspiré pour une expérience de physique expérimentale... C'est alors qu'Olivier me confirme que je le sujet est libre (élan de joie intérieur!) et qu'il m'invite à venir voir l'expérience. « Alors, la voici. C'est simple : on a un plateau vibrant, sur lequel on dépose quelques disques, on effectue des acquisitions, on traite les images et le tour est joué. » Ca m'a semblé tellement facile que j'ai tout de suite confirmé mon intérêt pour le sujet ! Les premières heures avec la machine, je me suis même dit que j'arriverai à finir mon sujet en quelques semaines... j'étais alors bien naïf. Ce n'est qu'une fois les expériences lancées, que j'ai réalisé que les disques ne bougent pas forcément toujours de façon homogène sur le plateau, rendant mes premières semaines de thèse un peu plus délicates que ce que j'avais anticipé. Cette machine que j'avais imaginée et qui me faisait rêver, j'ai commencé à vouloir m'en détacher. Mais n'ayez craintes, avec de la ténacité, on peut la dompter, et c'est là que l'on commence à s'y attacher, voire à l'admirer, au point de vouloir poursuivre en postdoc pour continuer à la comprendre et à la faire parler. Cette expérience est magnifique, car elle est simple et extrêmement bien pensée. Ses auteurs (Julien Deseigne, et Olivier Dauchot) ont fait preuve d'une incroyable ingéniosité qui m'a permis de m'émerveiller devant quelque chose d'assez basique en somme (un liquide de disques durs polaires).

Bref, j'ai adoré mes quatre ans de thèse et de postdoc sur cette expérience, encadrés par Olivier Dauchot. Ainsi, après cette (plutôt) longue discrétion, j'ai envie d'exprimer ma profonde admiration envers Olivier Dauchot. Olivier, je veux te remercier très chaleureusement. D'une part, tu m'auras permis de vivre de ma passion (en m'aidant à décrocher la bourse et en obtenant un financement pour me permettre de poursuivre en postdoc) pendant quatre ans, ce qui n'est pas rien. D'autre part, je mesure la chance que j'ai eu de débiter ma carrière auprès de toi, tant humainement que professionnellement. Je retiendrai en particulier ta dévotion et ta passion pour la physique. Tu m'as enseigné et proposé beaucoup de méthodes, qui je le sais, malgré mon côté peu plastique, doivent être mises en oeuvre pour continuer à progresser jusqu'à m'émanciper totalement. Mes remerciements vont ensuite naturellement à Michael Shindler, mon second directeur. D'un collègue d'Olivier, tu as accepté de t'investir réellement dans l'encadrement de ma thèse, et tu l'as parfaitement assumé. Pourtant je ne t'ai pas rendu la tâche facile. Entre mes lacunes en numérique, qui m'ont amené à maintes reprises à venir à ta rescousse, et le nombre d'heures que tu m'as consacrées à répondre à des questions parfois naïves et souvent mal exprimées, tu as toujours su être patient envers moi. Tu m'as apporté beaucoup, tant au niveau des méthodes qu'au niveau de l'intuition physique. Enfin, vous concernant tous les deux, la force, l'efficacité, et la bonne humeur de travail que vous dégagéz est incroyable et admirable, en cela j'ai vraiment eu la chance d'atterrir auprès de vous. Encore merci. Ensuite, j'aimerais remercier Elie Raphael, directeur du laboratoire Gulliver, qui grâce à sa bienveillance et sa gentillesse, permet que l'on se sente bien au sein du laboratoire. Le personnel administratif du laboratoire, Stéphanie, qui j'espère trouvera son bonheur auprès de sa famille en Martinique, et je n'oublie pas

Gabrielle, qui m'aura bien intégré lors des quelques semaines qui ont précédé sa retraite.

J'aimerais remercier très chaleureusement l'ensemble des membres de l'équipe EC2M, qu'elles soient permanentes, Teresa, Mathilde, ou qu'elles l'aient été, Elisabeth. Je remarque au passage à quel point EC2M est dans l'air du temps : plus de femmes que d'hommes, pour une équipe de physiciens cela mérite d'être souligné ! Les non-permanents étant nombreux, je préfère m'excuser à l'avance pour ceux que j'aurais oublié par mégarde. Merci tout d'abord à Ziane et Maxime, qui ont grandement participé à mon intégration au sein du laboratoire. J'espère que vous profitez du Japon pour Ziane, et de la vie à Saint-Gobain, parmi l'ensemble des anciens de PC. Merci à Alexandre, pour qui j'ai beaucoup d'admiration, et Michael, hélas membre de PCT, on ne peut pas être parfait sur tous les plans. J'espère que vos projets, notamment de photographie d'art (AIR), réussissent. Kunuyn, ma co-thésarde de trois ans. N'oublie pas les paroles de la salade de fruit. Guillaume, tu as débuté ta thèse un an après, mais j'ai eu la chance de te côtoyer sur pratiquement toute la période de ta thèse. J'ai adoré partager mon bureau avec toi, même si sur quelques points nous divergeons (en particulier côté football), néanmoins en plus de nous laisser discuter librement, tu as essayé de prendre part à nos conversations avec Kamel, un grand bravo. Plus sérieusement, j'ai beaucoup d'admiration pour toi, tu es quelqu'un d'attachant, de grande ouverture, et avec une culture incroyable sur un grand nombre de sujets. Je te souhaite un bel avenir. Kamel, l'ingénieur de Platod qui a été accueilli dans notre équipe. La première chose que tu as faite en arrivant au bureau a été de mettre des goodies de l'OM, c'était risqué, mais finalement quatre ans plus tard ils sont toujours présents. J'ai été content de partager mon bureau avec toi, et de pouvoir discuter sans limites. Merci et bonne continuation dans le comptage de tes cellules de plaquettes sanguine ! Charlotte, je me souviens de ton envie de faire ta thèse sur les gouttes nageuses lorsque tu étais en stage de Master, tu en parlais avec tellement d'affect qu'il était presque évident que tu allais poursuivre sur ce sujet. Tu n'as pas reculé, 30 degrés hiver comme été devant des gouttes qui nagent, il faut en avoir de la persévérance, bravo ! Ensuite, j'aimerais remercier Camille, tu as effectué un court stage chez nous, mais tu t'es intégrée très vite dans l'équipe, c'était bien de t'avoir avec nous. Finalement tu as préféré suivre le soleil, et résoudre des équations que je ne comprends certainement pas à Montpellier. Bonne route à toi. Gaspard, avec qui j'ai dû partager l'expérience. Il faut dire que je suis tellement tombé amoureux de cette expérience que j'ai eu dû mal à accepter de la partager, mais finalement l'entente a été superbe : tu as fait vibrer des chaînes et des disques, et ça a fait un PRL... avec René. René, j'ai beaucoup apprécié le peu de temps que l'on a eu en commun. La vielle de ton départ pour le Mexique, j'ai pu te faire découvrir avec plaisir ce que je considère comme une bonne galette bretonne. Mais crois moi, la crêperie du vieux port de Port Haliguen en propose d'encore meilleures. Je t'y accompagnerai avec plaisir si tu reviens en France ! J'aimerais remercier Martyna, qui a réussi à m'amener voir un concert de

Soviet Suprem assez délirant. La petite histoire est que j'avais installé l'affiche de Soviet Suprem au dessus de mon bureau en arrivant au laboratoire, alors même que je n'avais jamais écouté une seule de leurs musiques, mais il faut dire que ce poster valait le détour. Alice, désolé d'avoir accaparé Olivier, j'espère que tu ne m'en veux pas trop. Paul, Jérôme, Simone, qui m'auront connu en pleine crise de stress les semaines précédant la soutenance. Enfin, vue la date à laquelle j'écris ces remerciements, j'en profite pour remercier Caleb, provenant d'Atlanta expressément pour faire vibrer des disques, Pierre, dont le rapport de stage de M2 m'aura bien servi tout au long de ma thèse, et Dae Sok, pour ses délicieuses soupes coréennes.

Enfin pour clore mes remerciements à la faste équipe EC2M, j'ai une pensée pour les postdocs qui étaient présents à mon arrivée, à savoir Marjolein, Khan Dang, Julien, et Anne-Dominique. EC2m a connu une croissance assez forte au cours de ma thèse, ceci s'explique certainement grâce à l'enthousiasme, à la joie, et la bonne humeur qui y règnent. Merci encore à l'ensemble de l'équipe pour ces quatre années fabuleuses. A présent j'aimerais remercier l'ensemble des membres du laboratoire Gulliver, en particulier, Ken, avec qui j'ai eu plaisir d'échanger sur mes quelques avancées sur mon sujet, David, qui a toujours été bienveillant à mon égard, Tony et son amour incommensurable pour les desserts, les jeunes théoriciens, Vincent et Thomas, que j'admire beaucoup et avec qui j'ai toujours plaisir à discuter quel que soit le sujet, de montagne, de kite ou de surf. J'espère pour Thomas que le surf océanique est plus praticable que celui de la Seine. Enfin, Yannick et son équipe provenant du Japon. L'expérience de la recherche avant la thèse est assez mince, elle se résume essentiellement à des stages de quelques semaines, ainsi grâce à la thèse j'ai vraiment goûté à cette formidable épopée humaine que j'ai adorée. Je n'aurais pu prendre part à cette aventure sans la bourse que j'ai obtenue de la part de l'Ecole Doctorale, à cet égard j'aimerais remercier chaleureusement les membres de mon jury de m'avoir attribué cette bourse. J'aurai pleinement profité de cette période de doctorat : que rêver de mieux que d'être payé par exercer sa passion ? J'aimerais aussi remercier le personnel administratif de l'université PSL qui a toujours su répondre présent rapidement lorsque j'ai dû les solliciter et qui ont toujours fait preuve d'une grande amabilité. J'ai une pensée pour les doctorants de l'équipe du LPS, qui s'intéressent à des sujets tout aussi farfelus que le mien, et qui ont suivi de près mes états d'âmes lorsque mes disques ne vibraient plus de façon homogène. Nariaki, qui fait tourner des disques dans une machine à laver, Samuel, qui tricote des tissus pour en comprendre la physique sous-jacente, Théo, qui s'amuse avec ses origami à modeler des fleurs, et enfin Romain et Hugo qui regardent à quel point l'eau mouille.

J'aimerais remercier à nouveau Olivier de m'avoir offert la possibilité d'aller faire un séjour à Harvard chez Baudouin Saint Yves, et donc merci à Baudouin de m'avoir accueilli. Ce fût un séjour très intéressant et une expérience à la fois enrichissante et très plaisante pour moi. J'aimerais évidemment remercier les membres de mon jury d'avoir accepté de traverser la France pour certains afin d'évaluer mon travail.

Je resterai admiratif du travail que cette évaluation de thèse vous aura demandé, alors même que je ne vous aurai pas facilité la tâche en vous rendant le manuscrit peu avant la soutenance. J'avais par ailleurs eu l'occasion d'échanger plus ou moins longtemps avec vous durant certaines conférences, et cela a toujours été très inspirant et plaisant, j'espère vous revoir à l'occasion d'autres conférences. Pour leur bienveillance à mon égard, j'aimerais ajouter à mes remerciements trois chercheurs avec qui j'ai eu l'occasion d'échanger : Denis Bartolo, Julien Tailleur, et Emmanuel Trizac. Au cours de mon cursus universitaire j'ai dû faire des choix, en partie grâce aux rencontres décisives que j'ai pu faire avec certains enseignants et qui ont su me transmettre leur passion pour leur discipline et qui m'ont soutenu directement par ailleurs. Je pense en particulier à Mr Lecomte, mon professeur de mathématiques de troisième, certes quelques années avant le bac, mais c'est là que tout a commencé. Etienne Li et Fabrice Olivier (mes enseignants de Spé. en mathématiques et en physique qui m'ont conseillé et soutenu dans mes choix bien après que j'ai quitté la prépa), Yann Gallais (Directeur du Magistère de Diderot, qui m'a aussi encadré en projet de physique de matière condensée), Carole Diederichs (ma directrice de stage de M1), Guillaume Grégoire (mon directeur de stage de M2), et Philippe Lecheminant (mon enseignant de Physique Quantique de Master).

J'aimerais remercier mes amis Fabien, Florian, Yann, qui ont passé des heures à écouter mes histoires de physique, ne se plaignant presque jamais de trop en entendre sur les liquides de disques durs. Merci à mes parents et à ma Grand-Mother de m'avoir soutenu dans mes études, à ma petite sœur Pauline, à mon beau-frère Yoann et à ma grande sœur Rozenn, qui a accepté de relire une partie de ma thèse et s'est dévouée pour corriger la tournure de certaines phrases qui posaient quelques problèmes grammaticaux. Antony, tu as été bien courageux de faire l'aller-retour Toulouse-Paris dans la journée pour assister à ma soutenance, merci pour ta présence. Merci à la famille de Jeanne, à ses parents, son oncle, sa tante et son cousin d'avoir pris régulièrement des nouvelles de mes petits disques, sujet qui a tant pris de place dans ma vie ces dernières années.

Pour finir, j'aimerais fortement remercier mon amour Jeanne, à qui je dédie cette thèse. Sans toi, j'aurais eu bien du mal à finir dans les temps la rédaction de ce manuscrit, merci pour toutes tes heures de relecture. Tu me soutiens depuis plusieurs années et je t'avoue que je ne comprends pas toujours comment tu fais, vue l'ampleur de la tâche. Tu es bien courageuse d'écouter mes histoires de physique dès le petit déj, même si je pense avoir un peu ralenti le rythme depuis que l'on s'est pris de passion pour la météo de Marie-Pierre Planchon à la radio.

Chapitre 1

Introduction

L'objet de cette thèse est d'étudier les phases denses d'un système expérimental modèle de matière active. Nous y verrons notamment comment l'activité modifie le scénario de cristallisation, la stabilité de la phase cristalline, la dynamique des défauts au sein de celle-ci. A cette occasion, nous verrons que les notions de cristal, de solide, de liquide ne sont pas aussi claires que l'image qu'on s'en fait.

Dans ce chapitre introductif, nous commencerons par revoir ce qui définit et caractérise ces phases à l'équilibre thermodynamique. Puis nous introduirons la matière active, en soulignant en quoi elle diffère de la matière à l'équilibre. Ceci sera l'occasion de présenter un rapide historique de l'étude des systèmes actifs et l'état de l'art en ce qui concerne leurs phases denses, tel qu'il se présentait au début de cette thèse. Enfin, nous introduirons les objectifs de cette thèse et le plan du présent manuscrit.

1.1 Les états de la matière à l'équilibre

1.1.1 Phases d'équilibre : Structure, Dynamique, Mécanique

La matière qui nous entoure se présente principalement sous trois formes : gaz, liquide, solide. Ces trois formes sont communément décrites par les propriétés suivantes : le gaz occupe toute la place qu'on lui donne, le liquide prend la forme du récipient qui le contient, le solide possède une forme qui lui est propre ; il ne coule pas.

La physique statistique d'équilibre a permis de préciser ces notions un peu phénoménologiques. On sait aujourd'hui que la matière est composée d'entités élémentaires, les atomes ou les molécules, que les propriétés macroscopiques découlent du

potentiel d'interaction entre ces constituants, et qu'elles dépendent des conditions dans lesquelles le matériau se trouve. A l'équilibre, ces conditions sont entièrement données par la connaissance de la température, de la pression et de la densité du matériau considéré.

De façon un peu simplifiée, on peut distinguer deux types de propriétés microscopiques qui caractérisent ces trois états de la matière : il s'agit de la structure et de la dynamique. Dans un gaz, la structure est désordonnée et il n'y a essentiellement aucune corrélation du champ de densité. Le libre parcours moyen, la distance parcourue par une particule entre deux collisions, est très grand devant sa taille, ou son rayon d'interaction. Le champ de densité ne présente aucune corrélation temporelle. Dans un liquide, la structure est encore désordonnée, mais présente des corrélations non triviales. Le libre parcours moyen est de l'ordre de la taille des particules. Selon la température ou la pression, les corrélations temporelles au sein de la structure peuvent devenir significatives. Cependant, la structure se réorganise sur un temps fini. Dans un "solide", le profil spatial de densité est gelé. Les particules vibrent autour de positions moyennes et leur libre parcours moyen est petit devant leur taille. On peut distinguer en outre le cas où ces positions moyennes sont organisées sur un réseau ordonné – on parle alors d'un cristal –, du cas où elles sont distribuées de façon désordonnées – on parle alors d'un verre.

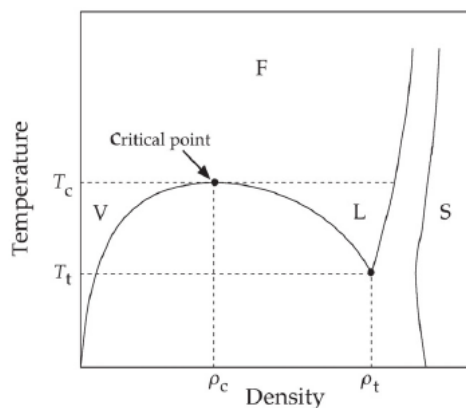
Les propriétés "mécaniques" qui classaient initialement les trois états de la matière découlent de façon *presque* naturelle de ces propriétés microscopiques. Le gaz n'ayant aucune cohésion occupe tout l'espace. Le liquide se réorganise pour couler sans opposer de résistance à un cisaillement. La structure ordonnée du cristal lui confère sa solidité. Pour le verre, qui est solide au temps court, mais coule éventuellement au temps très long, la situation est nettement moins claire, mais ceci est une autre histoire... le verre n'étant pas nécessairement une phase d'équilibre.

Il existe aussi d'autres phases, plus subtiles, telles que les cristaux liquides, qui possèdent un ordre structural partiel, mais coulent néanmoins comme les liquides.

Quoiqu'il en soit, à l'équilibre, un matériau dont la structure est ordonnée à longue portée et brise l'invariance par translation dans toutes les directions d'espace, est un cristal, donc un solide qui possède un module de cisaillement fini, en tout cas dans le régime de la réponse linéaire.

1.1.2 Diagramme des phases : rôles de l'attraction et de la répulsion

Le diagramme des phases usuelles d'un liquide simple (Réf. [36]) est représenté sur la figure (1.1-a). On y distingue les trois phases principales, gaz (ou vapeur), liquide et solide ainsi que les régimes de coexistence qui caractérisent les transitions de phases entre ces états.



(a)



(b)

FIGURE 1.1 – **Phases d'équilibre.** (a) : Diagramme des phases Température T -densité ρ typique d'un liquide. L : phase liquide. V : phase vapeur. S : phase solide. F : phase fluide. C : point critique, au-delà de ce point on ne peut faire la distinction entre un liquide et sa vapeur. t : point triple, coexistence des trois phases L,V et S. Sous la cloche, il y a coexistence du liquide et de sa vapeur, ou du solide et de sa vapeur. Figure extraite de [36]. Courbe de coexistence Liquide-Vapeur. (b) : Trajectoire d'une particule Brownienne. Figure extraite de [34].

Un potentiel d'interaction couramment utilisé pour décrire un liquide est le potentiel de Lennard-Jones qui présente une très forte répulsion à courte distance, et une attraction à longue distance. Si on supprime la partie attractive du potentiel, l'état liquide disparaît du diagramme des phases. Il est donc nécessaire, à l'équilibre, d'avoir un potentiel comportant une part attractive pour former un liquide.

Enfin, notons dès à présent que dans le cas des disques durs, pour lesquels le potentiel d'interaction ne comporte aucune échelle d'énergie, le diagramme des phases est indépendant de la température. Les états d'un système de disques durs à l'équilibre, sont entièrement déterminés par sa densité.

1.1.3 Dynamique d'équilibre : description effective

En principe pour décrire un liquide, il faudrait résoudre les équations de Newton pour chaque particule, en prenant en compte les forces qui découlent de leur potentiel d'interaction. La physique statistique d'équilibre permet de remplacer ce calcul exact de la dynamique par le calcul de moyennes d'ensemble, et d'obtenir par

exemple la dépendance de la densité en la pression et la température $\rho(P, T)$, que l'on appelle l'équation d'état du liquide.

Lorsque l'on s'intéresse à la dynamique du liquide, il peut être utile de faire appel à une description effective du liquide. Le déplacement d'une particule de la phase liquide peut se décomposer en une dynamique balistique à temps courts, entre deux collisions successives, et une dynamique à temps long, dont il apparaît qu'elle est diffusive et s'apparente au mouvement Brownien (voir figure (1.1-b)). On peut alors décrire la dynamique d'une particule de façon effective, par une équation de Langevin, ce qui consiste à supposer que la particule i est plongée dans un bain constitué des autres particules à une température T :

$$\dot{\mathbf{u}}_i(t) = -m\gamma\mathbf{u}_i(t) - \nabla_i U_{ext}(\mathbf{r}_i(t)) + \sqrt{2D_t}\eta_i(t) \quad (1.1)$$

où γ est un coefficient de dissipation visqueuse, $\eta(t)$ une force stochastique décrite par un bruit blanc Gaussien, de propriétés $\langle \eta(t) \rangle = 0$ et $\langle \eta(t)\eta(t') \rangle = \delta(t - t')$, et U_{ext} un éventuel potentiel extérieur.

L'effet du bain est double : la particule cède une partie de son impulsion dans le bain du fait de la dissipation visqueuse $-\gamma\mathbf{u}(t)$ et les collisions aléatoires avec les particules du bain apportent de l'énergie à la particule. L'état stationnaire qui en résulte décrit bien une physique d'équilibre si l'amplitude du bruit vérifie la relation d'Einstein $D = T/\gamma$. D s'appelle le coefficient de diffusion. En effet, le déplacement de la particule, caractérisé par son déplacement quadratique moyen $\langle \Delta\mathbf{r}^2(\tau) \rangle = \langle (\mathbf{r}(t + \tau) - \mathbf{r}(t))^2 \rangle_t$, est diffusif aux temps longs : $\langle \Delta\mathbf{r}^2(\tau) \rangle \sim 2dD\tau$. D est relié aux fluctuations de vitesse $D = \frac{1}{d} \int \langle \mathbf{u}(t)\mathbf{u}(0) \rangle dt$.

En résumé, les systèmes de particules à l'équilibre thermodynamique présentent principalement trois phases correctement décrites et bien comprises dans le cadre de la mécanique statistique d'équilibre. Dès lors que l'équilibre thermodynamique n'est pas satisfait, la situation peut s'avérer beaucoup plus complexe. Nous avons évoqué le cas des verres, mais nous allons voir que c'est aussi le cas de la matière active.

1.2 La matière active : une matière hors d'équilibre

1.2.1 Définition et exemples

Les composants élémentaires du monde vivant, qu'ils soient des animaux en mouvement, des cellules dans un tissu musculaire, ou des moteurs moléculaires, sont tout sauf à l'équilibre. Tous ont en commun de consommer et de dissiper de l'énergie pour fournir un travail.

Depuis une vingtaine d'années les physiciens ont commencé à s'intéresser à ces systèmes en tant que "matière". Plus précisément, il s'agit de concevoir un vaste troupeau d'animaux, une culture bactérienne, ou encore un tissu, comme un matériau, composé d'une multitude de composants élémentaires et d'essayer de l'aborder avec les outils de la physique statistique pour proposer une théorie prédictive de leur comportement macroscopique. On mesure à l'aulne de ce qui a été dit précédemment que l'enjeu est de taille : les principes d'équilibre ne s'appliquent *a priori* à ces systèmes. En effet, peu importe le mode de consommation d'énergie à l'échelle de la particule, celle-ci en consomme et en dissipe pour produire un travail. Sa dynamique est hors d'équilibre, la non conservation de l'énergie a pour implication que l'invariance par retournement temporelle de la dynamique est brisée, et donc le bilan détaillé n'est plus satisfait pour des particules actives.

Il existe deux façons duales d'aborder la matière active. L'une s'intéresse plutôt aux mouvements des particules et de facto s'applique bien à la caractérisation des phases diluées de matière active. L'autre s'intéresse plutôt aux forces développées dans les systèmes actifs et a surtout été développée dans le cadre de l'étude des tissus.

L'objet de cette thèse est, comme nous le verrons, de caractériser les phases denses d'un système de particules actives modèles, dont la phase diluée a bien été caractérisée au cours de travaux antérieurs. En conséquence, nous avons plutôt abordé la question sous l'angle de la physique des liquides. De ce point de vue, la matière active qui nous intéresse est un ensemble de particules dotées d'un mouvement autonome, qui n'obéit pas à une dynamique d'équilibre et que l'on appelle communément liquide actif.

Nous verrons plus loin plusieurs modèles de liquides actifs. Pour fixer les idées, contentons nous de dire que la trajectoire d'une particule dans un liquide actif n'est certainement pas Brownienne (voir figure 1.2). En effet, la particule active, dans les cas qui nous intéressent, est dotée d'une polarité avant/arrière. Cette polarité indique le sens de la force propulsive à l'origine du mouvement de la particule. Par ailleurs, la particule active dissipe de l'énergie dans son environnement. Il en résulte qu'elle acquiert une vitesse nominale v_0 qui la caractérise. Son mouvement est donc

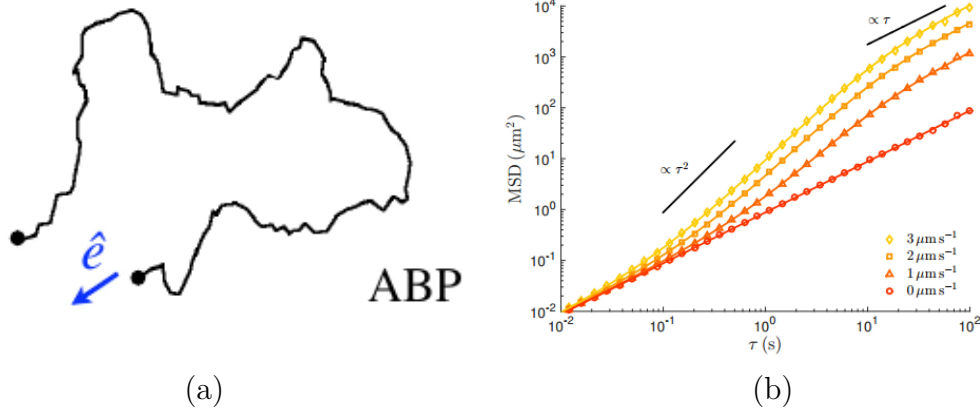


FIGURE 1.2 – **Dynamique d’une particule active** (a) : Trajectoire typique d’une particule active. Le vecteur \hat{e} indique la direction de la force de propulsion. Figure extraite ([26]). (b) : MSD (déplacements quadratiques moyens) en fonction du temps τ de particules actives isolées. Les différentes courbes codent pour différentes valeurs de la vitesse de propulsion des particules. On voit un premier régime super-diffusif à temps court, suivi d’un régime diffusif à temps long. La courbe rouge correspond au cas de vitesse nulle et représente le MSD d’une particule passive. Figure extraite ([4]).

ballistique sur le temps de corrélation τ_c de l’orientation de sa force propulsive. Sa trajectoire est donc caractérisée par une longueur de persistance $\xi = v_0\tau_c$. Le nombre de Péclet est le nombre sans dimension $Pe = \xi/d$ où d est la taille caractéristique de la particule, ou son rayon d’interaction. Aux temps longs devant τ_c , la trajectoire redevient diffusives.

Enfin, l’étude de la matière active a très clairement été motivée par des systèmes biologiques, qu’il s’agit des vols d’oiseaux organisés ou de la plasticité des tissus cellulaires. Cependant, les physiciens ont rapidement commencé à élaborer de nombreux systèmes expérimentaux modèles qui ne soient pas issus du vivant, mais possédant néanmoins les caractéristiques de la matière active. Nous verrons comment les réactions chimiques, électro-cinétiques, ou vibrations mécaniques ont été mises à profit pour assurer l’apport d’énergie à l’échelle des particules, ce qui est un élément déterminant de la matière active. Il est en effet crucial que les effets observés résultent d’un comportement émergent et non de la réponse à un champ extérieur dirigé.

A présent, nous allons décrire les deux principaux phénomènes spécifiques aux liquides actifs, qui ont fait l’objet d’un très grand nombre de travaux au cours des deux dernières décennies ; à savoir : la transition vers le mouvement collectif et la séparation de condensation induite par la motilité. Nous ne prétendons certainement pas à une quelconque forme d’exhaustivité dans ce rapide aperçu introductif, et

nous renvoyons le lecteur aux nombreuses revues écrites sur le sujet [4, 55, 91, 70].

1.2.2 Transition vers le mouvement collectif

L'étude du mouvements collectif au sein de grands groupes d'animaux, tel que les vols étourneaux (figure 1.3) ou d'autres mouvements de populations d'animaux grégaires a été l'une des premières motivations à l'origine de l'étude de la matière active.

Approches théoriques

Du point de vue réductionniste du physicien, il était en effet assez naturel de considérer ce problème de façon analogue à celui de la transition d'aimantation. En effet, si l'on considère chaque animal doté d'une flèche qui décrit sa direction arrière/avant le long de laquelle il se déplace, la mise en mouvement collectif d'un groupe d'animaux n'est rien d'autre que l'émergence spontanée d'une "aimantation" collective de l'ensemble de ces flèches. C'est ce qu'a proposé T. Vicsek en 1995 en formulant un des premiers modèles de particules auto-propulsées [90]

Le modèle de Vicsek consiste à simuler un ensemble de points dotés d'une vitesse de norme constante v_0 , dans un espace continu à deux dimensions. Les positions des particules et les orientations des vitesses, définies par l'angle θ , obéissent à une dynamique discrète selon les équations suivantes :

$$\vec{r}(t + \Delta t)_i = \vec{r}(t)_i + v\Delta t \begin{pmatrix} \cos(\theta(t)_i) \\ \sin(\theta(t)_i) \end{pmatrix}. \quad (1.2)$$

$$\theta(t + \Delta t)_i = \langle \theta(t)_j \rangle_{|\vec{r}_i - \vec{r}_j| < R} + \eta_i(t), \quad (1.3)$$

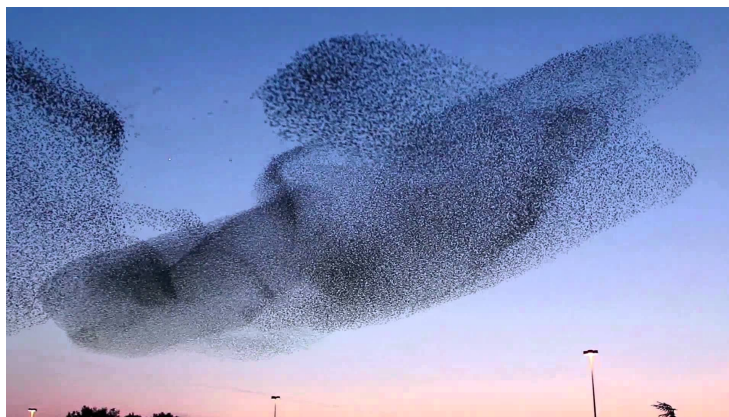


FIGURE 1.3 – Nuées d'étourneaux Image extraite de la Réf. [48].

L'équation (1.3) signifie que les particules alignent la direction de leur déplacement selon la direction moyenne des particules voisines situées à une distance R . La dynamique est soumise à un bruit aléatoire η tiré selon une distribution uniforme et de moyenne nulle.

Les simulations de ce modèle (figure 1.4) montrent une transition entre un état désordonné à fort bruit et faible densité, vers un état ordonné, où les vitesses s'alignent en moyenne, à faible bruit et densité plus élevée. Le modèle produit donc bien une transition de mise en mouvement collectif. Le passage de l'état désordonné à l'état totalement ordonné est marqué par un régime de coexistence au sein duquel les particules se structurent en bandes. Celles-ci se propagent en onde solitaire au sein d'un gaz dilué et désordonné.

L'étude de ce modèle a fait l'objet de nombreux débats quant à la nature de sa transition, d'une part parce qu'à l'équilibre une telle transition brisant une symétrie continue à deux dimension, ne peut donner lieu à une phase ordonnée à grande distance, d'autre part, car les effets de taille finie étant très important, il a fallu réaliser des simulations avec un très grand nombre de particules pour statuer sur la nature de la transition. En étudiant le comportement des cumulants de Binder (réf. [32]), il a finalement été établi que la transition était du premier ordre.

Le modèle de Vicsek est un modèle très efficace du point de vue simulation. Il s'agit aussi d'un modèle "très effectif" au sens où la vitesse ne fluctue pas, et où l'alignement est imposé dans les règles d'interaction. Si on veut s'approcher un peu plus des modèles de particules usuels, on peut écrire à nouveau une équation de Langevin, mais en la généralisant de telle sorte qu'elle ne satisfasse plus le bilan détaillé et qu'elle intègre la polarité de la particule. Le modèle le plus simple que l'on puisse écrire est celui pour lequel une force constante, dont l'orientation diffuse continûment, tracte la particule. Cette classe de modèles appelés

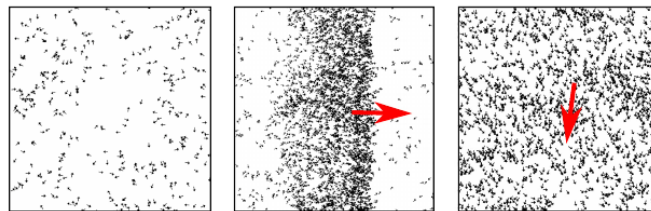


FIGURE 1.4 – **Résultats numériques du modèle de Vicsek.** Figure extraite de la Réf. [32]. Trois phases issues d'une simulation numérique du modèle de Vicsek. Les particules sont représentées par des points. A gauche, les particules sont dans un état totalement désordonné. Au milieu, le mouvement est assez ordonné, mais la distribution des particules est hétérogène. A droite, le mouvement est ordonné et homogène. La flèche rouge indique la direction du mouvement global des particules.

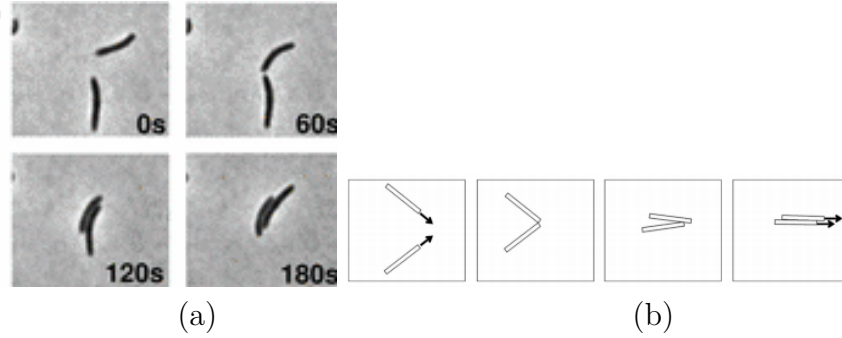


FIGURE 1.5 – **Alignement stérique entre bactéries et modélisation par deux bâtonnets.** Figures extraites des Réf. [69] et [68]. Deux particules, (a) bactéries, ou (b) modèles, ayant une dynamique active qui s’alignent l’une par rapport à l’autre du fait de leur forme allongée.

“Active Brownian Particules” (ABP) obéit à deux équations de Langevin qui, dans leur version sur-amortie s’écrivent :

$$\dot{\mathbf{r}}_i = v_0 \hat{\mathbf{e}}(\theta_i) - \mu_t \nabla_i \sum_{j=1}^N V(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) + \sqrt{2D_t} \xi_i \quad (1.4)$$

$$\dot{\theta}_i = \mu_r \sum_{j=1}^N \Gamma(\theta_j - \theta_i, \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) + \sqrt{2D_r} \eta_i \quad (1.5)$$

Ces équations traduisent l’évolution de N particules ABP sur-amorties. La direction de la force d’auto-propulsion $\hat{\mathbf{e}}$ et celle de la vitesse restent toujours alignées. Les particules interagissent entre elles selon un potentiel V , et éventuellement au travers d’un terme d’alignement, sous la forme du couple Γ . ξ et η sont deux bruits blancs Gaussiens non corrélés. Ils agissent sur les degrés de liberté en translation et en rotation. Les bruits ne sont pas forcément de nature thermique. Il n’y a pas d’équivalent à la relation d’Einstein. Ces équations peuvent par exemple décrire l’alignement qui résulte de la forme allongée de particules, par exemple de bactéries (voir figure (1.5)). En revanche, pour des particules circulaires ou sphériques, $\Gamma = 0$, et le modèle ne comporte aucun alignement.

D’un point de vue théorique, il nous faut enfin citer les travaux concernant la description hydrodynamique des liquides actifs. Comme pour les liquides usuels, on s’intéresse à la dynamique à grande distance et aux temps longs du système. J.Toner et Y.Tu (Réf. [88, 87]) ont proposé une description hydrodynamique du mouvement collectif en se basant sur les symétries de la phase ordonnée, c’est-à-dire en tenant compte de la brisure de l’invariance galiléenne. Cette approche a été enrichie par la suite par E.Bertin, G.Grégoire et M.Droz (Réf. [8]), puis par de nombreux autres auteurs qui ont dérivé les équations hydrodynamiques du fluide actif à partir d’une théorie cinétique, inspirée de l’équation de Boltzmann. Ceci permet notamment d’obtenir la dépendance des coefficients de transports vis-à-vis des paramètres microscopiques du problème mais aussi de la densité.

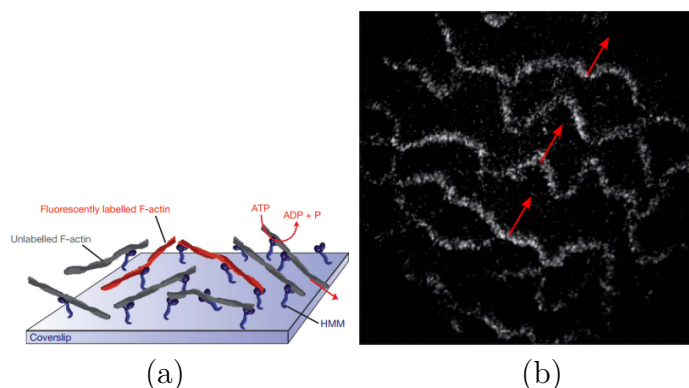


FIGURE 1.6 – **Mouvement collectif observé dans une population de filaments d’actine déposés sur un tapis de moteurs moléculaires.** Figures extraites de la Réf. [75]. (a) : Schéma de principe. Des filaments allongés d’actine repose sur un substrat de moteurs moléculaires. Les moteurs moléculaires exercent une force sur les filaments qui propulsent les filaments d’actine selon leur polarité. Les filaments s’alignent de façon stérique. (b) : Les filaments progressent dans une même direction en formant des bandes. Les flèches rouges indiquent la direction du mouvement.

Expériences modèles

Il s’est écoulé près de 15 ans entre la proposition par T.Vicsek de son modèle pour décrire les vols d’oiseaux et la réalisation des premières expériences contrôlées visant à étudier un système de particules auto-propulsées, présentant de l’alignement mutuel. A nouveau, nous ne prétendons pas ici mener une revue exhaustive. Nous présentons brièvement trois systèmes : le premier parce qu’il fut probablement le premier système expérimental contrôlé à présenter du mouvement collectif, le second car il présente une transition vers le mouvement collectif spectaculaire, le dernier parce qu’il met l’accent sur un élément de la dynamique ignoré dans les modèles décrits ci-dessus, et par ailleurs, car il s’agit du système expérimental qui sera utilisé au cours de cette thèse.

L’expérience menée par A.Bausch[75] concerne des filaments d’actin déposés sur un tapis de moteurs moléculaires. Les moteurs moléculaires consomment de l’énergie à travers l’hydrolyse de l’adénosine triphosphate (ATP) en adenosine diphosphate (ADP). Les moteurs moléculaires sont immobilisés sur le substrat mais propulsent les filaments d’actine. Les filaments ont une polarité qui détermine la direction vers laquelle les moteurs moléculaires vont exercer leur force. Tout se passe comme si les filaments se déplaçaient de façon autonome à la surface du substrat. En accroissant la densité de filament, les auteurs observent le passage d’une phase désordonnée à une phase dite polaire, au sein de laquelle les filaments se déplacent de façon cohérente dans une direction, en formant des bandes allongées, comme observé sur

la figure (1.6-b). L'alignement résulte dans ce cas d'un alignement stérique, du fait de la forme allongée des filaments. On note cependant que les auteurs n'observent pas de phase polaire homogène.

La seule expérience dans laquelle une véritable phase polaire de mouvement collectif a été observée, est l'expérience conduite par D. Bartolo avec un système de colloïdes rouleurs [12]. En mettant à profit la rotation de Quincke, un mécanisme de mise en rotation de particules isolantes dans un fluide faiblement conducteur sous l'application d'un champ électrique statique, D. Bartolo réussit à mettre en mouvement un très grand nombre de colloïdes dans un canal centimétrique. Les colloïdes s'alignent à la fois du fait des interactions hydrodynamiques et électro-statiques. Les particules ont un diamètre de quelques microns, et sont quasiment insensibles au mouvement Brownien. La longueur de persistance de leurs trajectoires est gigantesque. Il en résulte un mouvement collectif spectaculaire qui se développe sur plusieurs centimètres (voir figure (1.7)).

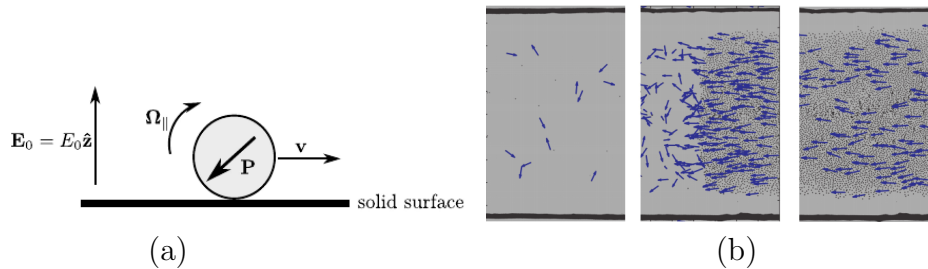


FIGURE 1.7 – **Mouvement collectif de colloïdes rouleurs mis en mouvement par la rotation de Quincke.** Figures extraites de la Réf. [12]. Une sphère isolante est plongée dans un fluide conducteur. Un champ électrique est appliqué aux bords du fluide. La sphère répond à la présence du champ par la formation d'un dipôle de charges électriques. Si le champ appliqué dépasse une valeur seuil, une instabilité se produit, la polarisation \mathbf{P} génère un couple, et la particule avance avec une vitesse \mathbf{v} (figure (a)). (b) : Photo de l'expérience des colloïdes rouleurs. A faible densité, les particules forment un gaz désordonné. En forte densité, on observe un mouvement collectif de l'ensemble des particules. La transition est discontinue et présente un régime de front propagatif.

Enfin, terminons ce très bref exposé avec l'exemple des grains marcheurs, qui seront utilisés tout au long de cette thèse. Nous nous contenterons ici de dire qu'il s'agit de disques métalliques, dont le mouvement est assuré par un contact asymétrique avec le plateau vibrant sur lequel ils reposent. Ce système mis au point au cours de la thèse de Julien Deseigne [20] présente aussi des mouvements collectifs (voir figure 1.8). Pourtant, les particules sont circulaires, présentent des collisions essentiellement élastiques et ne sont pas soumises à des interactions hydrodynamiques ! Nous verrons que l'ingrédient essentiel à la compréhension de l'émergence d'un alignement effectif dans ce système consiste à ne pas confondre vecteur vitesse et

vecteur propulsion de la particule. Temporairement la vitesse et la force de propulsion peuvent être non alignées, en particulier à la suite d'une collision. La relaxation de la vitesse vers la direction de la propulsion, conjointement à la relaxation de la direction de propulsion vers celle de la vitesse conduit à un alignement interne de ces deux vecteurs, qui tend à aligner les particules entre elles [94].

1.2.3 Transition de condensation induite par la motilité.

D'un point de vue théorique, la dérivation des équations hydrodynamiques au moyen de la théorie cinétique nécessite un certain nombre d'approximations, qui reposent en grande partie sur le fait de considérer des liquides suffisamment dilués. Pour autant, d'un point de vue phénoménologique, les arguments de symétrie qui les sous-tendent sont valables à plus haute densité. On sait aussi par expérience de l'hydrodynamique d'un fluide à l'équilibre que les équations de Navier-Stokes demeurent valides bien au-delà des densités pour lesquelles la théorie cinétique serait justifiée. Qu'en est-il dans le cas des liquides actifs ? Y a-t-il des effets de densité propres aux systèmes actifs, et si oui lesquels ?

Plus concrètement, les modèles décrits ci-dessus considèrent un module constant de la vitesse des particules actives. Ceci se justifie bien en milieu dilué. En effet, une particule active isolée voit sa vitesse relaxer vers sa vitesse nominale v_0 , qui est prescrite par l'équilibre entre le mécanisme de propulsion et les mécanismes de dissipation. On peut naturellement penser qu'au-delà d'une certaine densité, qui

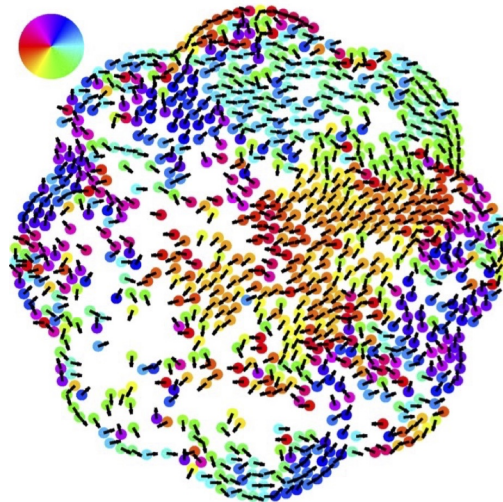


FIGURE 1.8 – **Instantané d'une expérience de grains marcheurs** Figure extraite de la Réf. [20]. Les grains marcheurs sont des disques polaires vibrés. Sur la photo on observe des disques coloriés selon le degré local d'alignement. Les flèches noires indiquent le sens de déplacement des disques.

dépendra du système considéré, la particule active n'a plus le temps de relaxer sa vitesse. La vitesse moyenne, ou typique, v , des particules actives dans un système dense sera donc en général inférieure à v_0 , et on peut s'attendre à ce qu'elle dépende de la densité $v(\rho)$.

Approches numériques et théoriques

Il a très rapidement été montré[15] que pour un système dense de particules actives sans interaction d'alignement, une décroissance suffisamment forte de la vitesse avec la densité conduit à une instabilité et à une transition de condensation, appelée par la suite Motility Induced Phase Separation (MIPS). Le mécanisme de cette instabilité est très simple : une fluctuation de densité à la hausse ralentit la vitesse localement. Un ralentissement de la vitesse conduit à une accumulation de particules, donc à un accroissement de la densité. La boucle est bouclée : ce mécanisme de rétroaction positif est la source de l'instabilité.

Plusieurs modèles ont permis de vérifier ce scénario numériquement. Le modèle effectif le plus simple consiste à prendre un modèle de type Vicsek, sans interaction d'alignement, mais avec un module de la vitesse des particules ponctuelles qui dépend de la densité locale estimée par chaque particule dans une boule de rayon R , centrée sur elle. La décroissance de la vitesse avec la densité peut aussi émerger spontanément de l'encombrement lorsque les particules présentent un potentiel répulsif. La figure 1.10 illustre la séparation de phase observée dans un modèle d'Active Brownian Particles sphériques ($\Gamma = 0$ dans l'équation 1.5), dotées d'un potentiel répulsif de type WCA. On y voit très nettement la coexistence de clusters denses au sein d'une phase diluée. Au cours du temps ces clusters coalescent, suivant un scénario en tout point similaire à une séparation de phase liquide-gaz d'équilibre. Le diagramme des phases est défini par deux paramètres, la densité d'une part, le nombre de Péclet, $Pe = \xi/d$ ou ξ est la longueur de persistance des trajectoires des particules actives isolées, ce qui fournit une mesure du niveau d'activité.

De nombreuses variantes de ce dernier modèle ont été testées, certaines prenant en compte l'inertie (Réf. [76, 59]) des particules. Certains modèles couplent les bruits translationnels et rotationnels (Réf. [83, 73]), d'autres les laissent indépendants, (Réf. [25, 72]), d'autres encore ignorent le bruit translationnel (Réf. [25, 72]). Enfin différents potentiels d'interaction ont été utilisés. La séparation de phase semble robuste vis-à-vis de ces variations.

L'observation d'une séparation de phase dans un état à basse densité est surprenant si l'on se réfère à la séparation de phase liquide-vapeur d'équilibre, pour laquelle la présence d'attraction entre les particules est requise. Dans le cas présent, il n'y a pas d'attraction explicite dans les interactions. Néanmoins, deux particules actives qui arrivent face-à-face et entrent en collision se feront face un certain temps, cor-

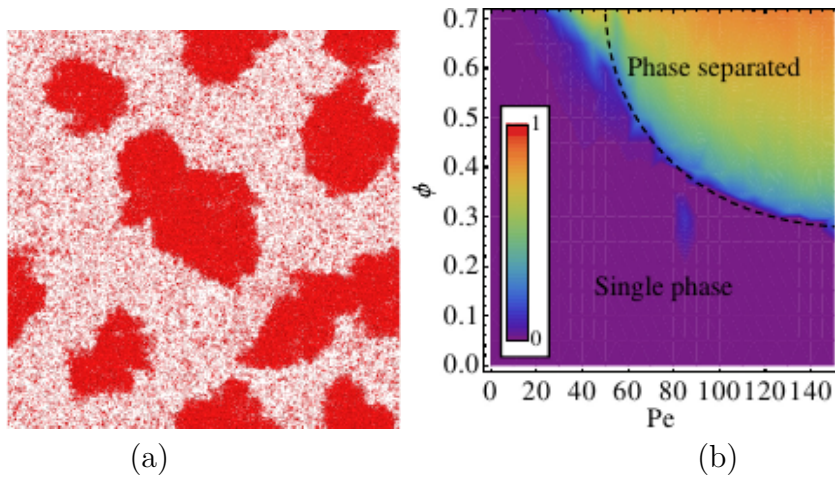


FIGURE 1.9 – **Séparation de phases observées dans une simulation de particules ABP.** Figures extraites de la Réf. [73]. La dynamique des particules est du type ABP, avec du bruit translationnel et une interaction par volume exclu modélisée par un potentiel WCA. (a). Instantané de particules ABP où l’on observe de la coexistence d’agrégats denses et de particules en phase diluée. (b) : Diagramme des phases dans le plan fraction surfacique ϕ - Peclet Pe . Le code couleur traduit le taux de “clusterisation”.

respondant au temps de persistance de leur orientation, ce qui peut se concevoir comme une forme d’attraction effective.

A grande échelle, (Réf.[15]), le coefficient de diffusion renormalisé dépend explicitement de la densité; une instabilité apparaît dès lors que $D[\rho(r)] < 0$, ce qui se traduit par $dv/d\rho < v/\rho$.

Expériences modèles

Plusieurs expériences de colloïdes Janus actifs [65, 13, 66] ont observé les prémices d’une séparation de phase.

Les colloïdes Janus utilisés sont des sphères de quelques micromètres dont les deux hémisphères sont dans des matériaux différents, ce qui leur confère une polarité (voir figure 1.10-a). Le mécanisme à l’origine de la propulsion des particules est phorétique. Selon les systèmes, il peut s’agir de diffusio-phorèse ou d’électro-phorèse. Dans tous les cas, il s’agit de développer un gradient d’un champ de concentration parallèle à la surface du colloïde qui conduit à son tour à une vitesse de glissement à l’interface, donc à la mise en mouvement du colloïde.

Dans toutes ces expériences, l’activité favorise la formation de clusters denses, coexistant avec une phase diluée (voir figure 1.10-b). Même s’il n’est pas exclu qu’il

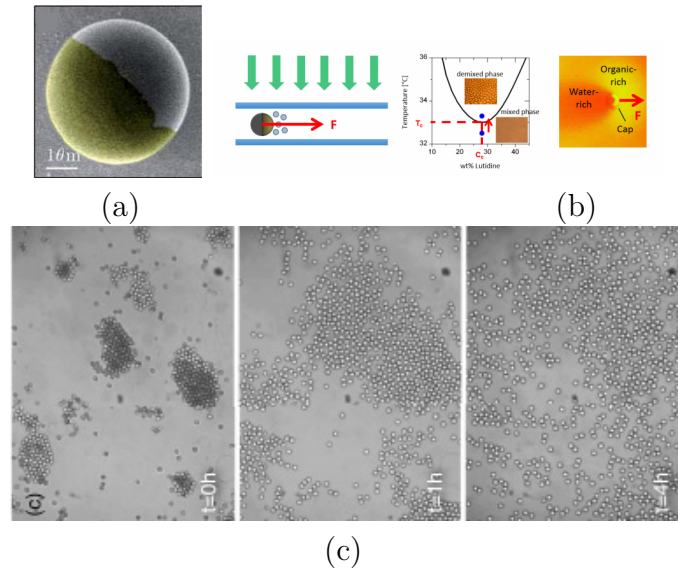


FIGURE 1.10 – *Clustering* observé dans une expérience de particule Janus. Figures extraites de la Réf. [13]. (a) : colloïde janus de taille $10 \mu\text{m}$, composée d'une bille de silice recouverte sur une hémisphère de graphite. (b) : La particule janus est plongée dans un liquide binaire bien homogène. Ce liquide présente un point critique, au-dessus duquel il sépare de phases. Lorsque l'on illumine la particule, la lumière est absorbée par la surface de graphite. Cela génère un échauffement, de sorte que la température locale du bain est supérieure à la température critique. Le mélange binaire sépare de phase localement devant la particule, et conduit à un gradient de concentration chimique. La particule est propulsée dans la direction inverse du gradient. (c) : Les particules janus forment des clusters. Lorsque l'on éteint la lumière, le processus est totalement réversible. Les particules se dispersent dans la solution. Les images montrent des instantanés à partir du moment où la lumière a été éteinte.

Il y a d'autres sources d'attraction entre les particules, il est en général possible de montrer que la taille des clusters croît avec l'activité. Cette formation de *clusters* laisse donc penser à la séparation de phases proposée par le scénario de MIPS décrit ci-dessus. Cependant, les *clusters* ont une taille limitée et ne se condensent pas en un unique *clusters* comme cela a pu être constaté dans les simulations.

Il n'y a pas à ce jour de mécanisme unique, clair qui explique pourquoi la séparation de phase ne se poursuit pas. Il est possible que la cinétique de plus en plus lente ne permette pas à la séparation de phases de s'accomplir sur les durées d'observation expérimentale. Il est possible, selon les mécanismes de propulsion, que ceux-ci s'affaiblissent dans les régions trop denses et que le nombre de Péclet effectif devienne trop faible pour observer MIPS. Enfin, il est possible que des mécanismes de fragmentation interne aux clusters entrent en compétition avec leur agrégation.

1.3 Vers les phases denses de particules actives

A la lumière de ce que nous avons vu, on peut considérer que la communauté des physiciens de la matière active possédait une bonne compréhension de la phase liquide au moment où cette thèse s'est mise en place. L'objet de celle-ci était de s'intéresser aux phases denses de la matière active et en particulier, à celle du système expérimental modèle de disques auto-propulsés mis au point par Julien Deseigne.

La motivation était double. D'une part, on a pu voir que dès la formation de clusters denses, il semble que certains mécanismes limitent ou bloquent la séparation de phases prévues théoriquement. Cela suggère de s'intéresser aux phases denses homogènes pour tenter d'identifier ces mécanismes. D'autre part, s'il est vrai que les mouvements collectifs observés dans les grands groupes d'animaux, nuées d'oiseaux, troupeaux, bancs de poissons se déroulent dans des environnements relativement dilués, il est aussi vrai que la plupart des systèmes cellulaires, bactériens ou tissulaires sont en fait des systèmes très denses. Il semblait donc très important de ce point de vue aussi de faire progresser le domaine de la matière active vers les phases véritablement denses.

Au début de cette thèse, il existait peu de travaux sur les phases denses actives, par rapport aux nombreuses publications sur les liquides. Dans la partie suivante nous présentons l'état de l'art concernant la cristallisation et la vitrification des systèmes actifs, tel qu'il se présentait au début de nos travaux. Par ailleurs, nous exposerons les questions que nous nous sommes posées au début de cette thèse. Nous verrons ensuite que le déroulé de la thèse n'a pas forcément suivi le plan initial ; une nouvelle question d'actualité a émergé et a fortement animé la communauté. Ceci sera l'occasion de présenter le plan finalement adopté dans ce manuscrit.

1.3.1 Systèmes denses actifs : état de l'art à l'automne 2014

Du point de vue expérimental, il n'existait pas véritablement d'étude de système actif modèle en phase dense. Du point de vue théorique, les quelques travaux que nous allons passer en revue consistaient en l'étude numérique de quelques modèles de particules actives.

Comme à l'équilibre, on peut distinguer deux types de phases denses : les phases ordonnées, cristallines, et les phases désordonnées, vitreuses.

Systèmes denses ordonnés

A notre connaissance le premier travail concernant la cristallisation d'un système de particule active a été conduit dans l'équipe de H.Löwen en 2012 [10]. Les auteurs

étudient un système d'ABP en deux dimensions, propulsées par une force f . Les particules interagissent au travers d'un potentiel répulsif de Yukawa avec un coefficient de couplage adimensionné $\Gamma = V_0\rho^{1/2}/k_B T$ et une longueur d'écrantage λ . Les particules ne présentent pas d'interaction d'alignement. Les auteurs varient uniquement Γ , ce qui revient à varier la densité ρ , et la force de propulsion f , et reportent la présence d'une phase cristalline à suffisamment haute densité. Ils constatent cependant que la densité de cristallisation est d'autant plus élevée que la force de propulsion est grande. Ils observent également que la transition s'accompagne de fortes fluctuations structurales et que les signatures structurales et dynamiques de la transition ne coïncident pas. La phase dense obtenue au-delà de la cristallisation n'est malheureusement pas décrite en détail.

Toujours dans l'équipe de H.Löwen, ce travail numérique a été suivi d'un travail théorique [57] qui a consisté à proposer une théorie des champs pour la cristallisation d'un système actif, en unifiant un modèle de champ de phase pour la cristallisation d'équilibre à la théorie de Toner et Tu pour décrire l'hydrodynamique des systèmes de particules auto-propulsées. Dans ce cas, l'alignement entre les particules est pris en compte. Les auteurs simulent les équations continues qui décrivent à la fois les modulations du champ de densité et le vecteur polaire qui décrit l'alignement global des vitesses. Les auteurs concluent ici aussi que l'activité favorise les phases liquides. En outre, ils font état de l'existence d'une phase cristalline en mouvement au sein de laquelle les particules migrent collectivement tout en conservant un ordre cristallin.

Enfin, nous nous attarderons un peu plus sur une étude numérique conduite dans l'équipe d'E.Frey [95] au cours de laquelle les auteurs se sont concentrés sur le rôle des défauts dans le comportement d'une phase cristalline active. Le modèle numérique est cette fois de type Vicsek, auquel une interaction répulsive a été ajoutée :

$$\mathbf{x}_i(t + \Delta t) = \mathbf{x}_i(t) + \Delta t \mathbf{v}_i \quad (1.6)$$

$$\mathbf{v}_i(t + \Delta t) = v_a \frac{\sum_{j \in A_i} \mathbf{n}_j(t)}{|\sum_{j \in A_i} \mathbf{n}_j(t)|} + v_r \sum_{j \in A_i, i \neq j} \frac{x_{ij}(t)}{|x_{ij}|}, \quad (1.7)$$

avec $\mathbf{n}_i = \mathbf{v}_i / |v_i|$, $x_{ij} = x_i - x_j$ la position relative des particules i et j . A_i représente un cercle de rayon R centré sur la particule i . Dans ce modèle v_a définit l'intensité d'alignement et l'intensité de la vitesse de propulsion. Le second terme décrit la force de répulsion de la particule i avec les particules $j \in A_i$. Cette force a pour effet de déplacer des particules dont la distance est inférieure à R d'une quantité $v_r \Delta t$. R défini dans la suite le rayon d'une particule.

Les paramètres de contrôle du modèle sont la densité $\rho = N\pi R^2/L^2$, où N est le nombre de particules et L la taille de la boîte, et le rapport $\nu = v_r/v_a$. Les auteurs mesurent deux paramètres d'ordres, celui lié à l'ordre polaire $P = \langle \Pi(t) \rangle_t$, avec $\Pi(t) = |\langle n_i(t) \rangle_i|$ et celui lié à l'ordre local hexatique $\Psi_{6,k} = \frac{1}{N_k} \sum_{j \in N_k} \exp(i * 6\theta_{kj})$ où θ_{kj} est l'angle que fait la direction du vecteur entre les positions des particules

k et j par rapport à un axe arbitraire. Et l'ordre hexatique global est donné par $\Psi_6 = \left\langle \left| \langle \Psi_{6,k} \rangle_i(t) \right| \right\rangle_t$

A haute densité les auteurs observent deux phases : une phase liquide et une phase spatialement ordonnée, qui chacune peuvent présenter de l'ordre polaire (figure 1.11). A densité constante $\rho = 0.85$, en faisant varier ν , les auteurs constatent qu'au niveau de la structure du cristal, l'ordre polaire tend à fracturer le cristal en poly-cristal. De nombreuses lignes de dislocations (des joints de grains) sont observées. D'un point de vue de la dynamique, les blocs cristallins coulent. Pour des régimes intermédiaires en ν l'ordre polaire est très intermittent, ce qui fragilise fortement l'ordre cristallin. Les lignes de dislocations observées précédemment se multiplient et donnent naissance à de larges agrégats. Puis, lorsque ν augmente, l'ordre cristallin est bien établi, très peu de défauts sont observés, mais il n'y a plus aucun ordre polaire.

Systèmes denses désordonnés

Les approches pour étudier les systèmes désordonnés sont un peu similaires au cas précédent, le tout étant d'éviter la cristallisation, par exemple en utilisant des

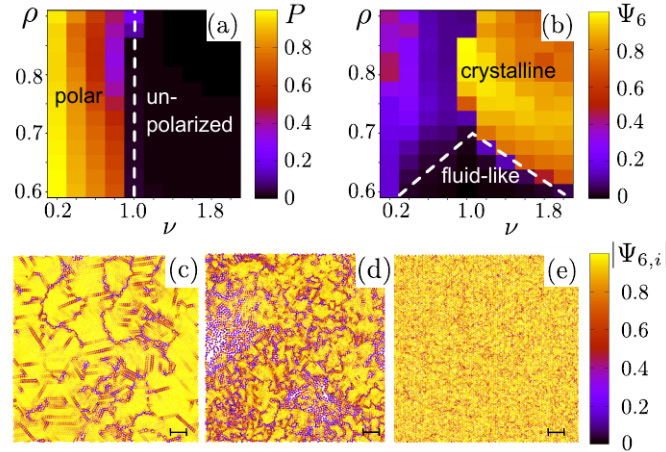


FIGURE 1.11 – Résultats numériques d'une simulation à haute densité de particules actives (a) : Diagramme des phases de l'ordre polaire dans le plan densité, ρ vs. force d'alignement entre les particules, ν : il y a deux phases distinctes, une polaire et une non polaire. (b) : Diagramme des phases de l'ordre structural dans le même plan. (c),(d) et (e) : trois instantanés d'une configuration à $\rho = 0.85$ et pour des valeurs de ν différentes. $\nu = 0.25$ pour la figure (c). $\nu = 0.75$ pour la figure (d). $\nu = 1.5$ pour la figure (e). Les particules sont coloriées selon l'intensité du champ local hexatique. La barre noire sur les figures indique une échelle de longueur de 20 R . Figures extraites de [95].

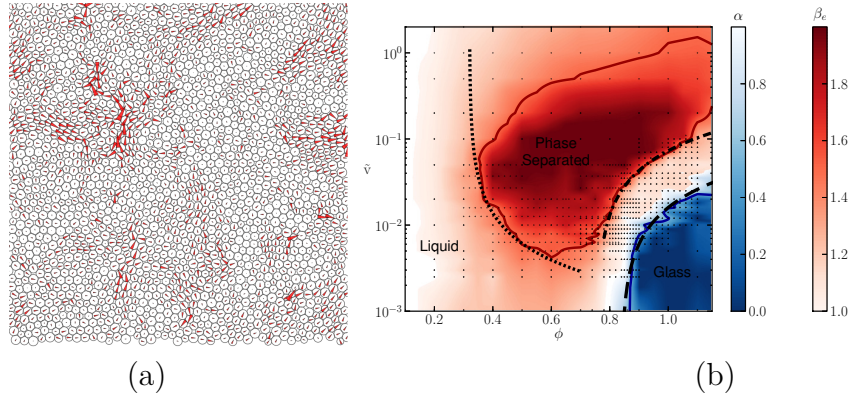


FIGURE 1.12 – **Résultats numériques d’une simulation à haute densité de particules actives polydisperses.** (a) : snapshot d’une phase dense. Les vitesses sont indiquées par les flèches rouges. (b) : diagramme des phases dans l’espace des paramètre packing fraction ϕ , vitesse dimensionnée \tilde{v} . α est l’exposant qui caractérise la dynamique et β_e , celui qui caractérise les hétérogénéités de densité. En rouge, on a une phase de coexistence, très dynamique, et en bleu, une phase homogène essentiellement gelée. Figures extraites de la Réf. [38].

systèmes de particules poly-disperses.

Dans une première simulation de particules actives poly-disperses en phase dense publiée en 2014 [38], les auteurs ont considéré un modèle de particules de type ABP, muni d’un potentiel harmonique. Les particules peuvent donc s’interpénétrer relativement facilement. Il n’y a pas d’interaction d’alignement entre les particules. Les paramètres de contrôle sont la fraction surfacique et la vitesse de propulsion, ou le nombre de Péclet. Les auteurs reportent l’existence de trois phases : un liquide homogène, un régime de coexistence de phases et une phase vitreuse gelée (voir figure 1.12). Les phases sont caractérisées par leur dynamique et par les fluctuations de densité. L’exposant qui caractérise le comportement au temps long du déplacement quadratique moyen est proche de zéro dans la phase gelée. L’exposant qui caractérise les fluctuations de densité est plus grand que 1 dans le régime de coexistence.

Deux autres études numériques se sont plus particulièrement intéressées à la transition vitreuse de particules actives ayant un potentiel d’interaction de type sphères dures.

La première considère 2000 sphères dures poly-disperses en trois dimensions [62]. Les particules sont modélisées comme des ABP. Il n’y a pas d’interaction d’alignement. Les auteurs s’intéressent principalement au temps de relaxation du liquide et montre que celui-ci est fortement réduit en présence d’activité. Il en résulte que les fractions volumiques de transition vitreuse sont beaucoup plus élevée qu’à l’équilibre.

La seconde étude procède de façon un peu originale [7]. Au lieu de recourir à une

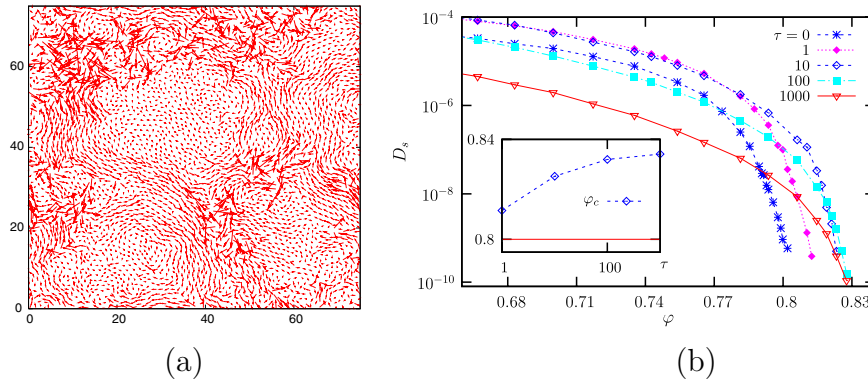


FIGURE 1.13 – **Résultats numériques d’une simulation à haute densité de particules actives polydisperses.** (a) : snapshot d’une phase dense. Les vitesses sont indiquées par les flèches rouges. (b) : Coefficient de diffusion en fonction de la fraction surfacique ϕ pour différents temps de persistance τ . Figures extraites de [7].

simulation de dynamique moléculaire d’équations du type Langevin, les auteurs réalisent une simulation de Monte-Carlo corrélée en temps, introduisant un temps de persistance τ sur l’orientation des déplacements testés. Le modèle capture donc la compétition entre persistance du mouvement codé par τ et la densité ϕ . Il n’y a pas d’interaction d’alignement. A temps long les conclusions sont similaires à celles de l’étude précédente, en ce sens que la transition vitreuse est ici aussi repoussée vers des densités plus élevées qu’à l’équilibre. Dans la phase dense, les auteurs reportent la présence de très fortes hétérogénéités de la dynamique (voir figure 1.13-a). Par ailleurs les auteurs font une autre observation, tout aussi intéressante, qui concerne la dynamique à temps court. Celle-ci est plus *lente* qu’à l’équilibre. Ceci se manifeste notamment par la mesure du coefficient de diffusion (voir figure 1.13-b). A faible fraction surfacique, le coefficient de diffusion est plus faible lorsque les particules sont actives.

Notons pour conclure cette partie, qu’il existe quelques autres modèles propres à l’étude des tissus, qui s’appuient sur une description des cellules en terme de polygones [9]. Ces modèles, appelés modèles de Vertex, ont ainsi été généralisé pour introduire une forme d’activité [30] et une transition fluide-solide a pu être observée.

1.3.2 Objectifs et déroulé de la thèse

Une évidence à la lecture de l’état de l’art présenté dans la section précédente est l’absence d’étude expérimentale concernant les phases denses de particules actives. Il existe au moins deux raisons à cela. D’une part, on a remarqué le délai de 15 ans qui a séparé la première modélisation de la transition de mouvement collectif

(1995) et ses premières réalisations expérimentales (2010), puis son observation spectaculaire par l'équipe de D. Bartolo (2013), c'est-à-dire à peine un an avant le début de cette thèse. En effet, il a fallu un temps assez considérable avant de concevoir de "bons" systèmes expérimentaux modèles. D'autre part, ces mêmes systèmes expérimentaux se prêtent assez mal à l'étude des phases denses. La plupart reposent sur un mécanisme de transport phorétique, qui est facile à décrire pour une particule isolée, mais qui devient nettement plus délicat à appréhender quand il s'agit de décrire l'interaction entre particules, et surtout dont l'efficacité, qui s'appuie sur des gradients de concentration, est fortement compromise dans une assemblée dense de particules pour laquelle la superposition, voire le mélange, des champs de concentration propre à chaque particule risque de réduire les gradients du fait de la diffusion.

Le système des grains marcheurs mis au point par Julien Deseigne est évidemment à l'abri de ce genre de problème, et il semblait très naturel de le mettre à profit pour étudier les premières phases denses expérimentales de la matière active.

Questions posées

Au début de cette thèse, nous ne disposions que d'une taille de disques (4 mm) auto-propulsé. Ceci permettait de commencer à étudier le phénomène de cristallisation, mais pas la transition vitreuse. Nous avons donc fait fabriquer une nouvelle série de grains marcheurs, de diamètre 5 mm, sachant que pour des disques passifs, ce type de mélange bi-disperse produit un verre modèle.

Par ailleurs, autant il est aisé de contrôler la fraction surfacique d'une assemblée de disques, autant il est beaucoup plus difficile de contrôler leurs propriétés dynamiques. Le dispositif expérimental que nous détaillerons permet de varier l'amplitude de la vibration à l'origine du déplacement des disques. Cette vibration détermine à la fois la vitesse de déplacement des disques, l'amplitude de la diffusion rotationnelle, donc la persistance de la marche des disques, mais aussi l'alignement entre les disques, qui dans le cas présent a une origine purement dynamique liée à la relaxation de son orientation et de sa vitesse. En régime dilué, Julien Deseigne avait caractérisé l'ensemble de ces paramètres, et nous les avons mesuré à nouveau pour tenir compte des modifications apportées au dispositif expérimental. Cependant, il faut garder à l'esprit que pour la particule isolée, ces paramètres sont évalués et fixés, et nous ne savons que très peu de chose sur ce qu'ils deviennent en phase dense.

Les questions que nous nous sommes donc naturellement posées au début de cette thèse sont les suivantes :

A l'ordre zéro, l'activité a-t-elle un effet qualitatif non trivial sur le comportement des phases denses de façon générale ? En effet, nous pourrions argumenter que dès

lors que les particules entrent en collision de multiples fois, en un temps bien inférieur au temps de persistance des trajectoires actives, l'effet de l'activité est noyé par la diffusion induite par les collisions. Quel est le rôle de l'alignement dans ce processus ? Nous pourrions penser, d'une part, que celui-ci risque d'être fortement réduit. D'autre part, nous pourrions concevoir aussi que si les particules s'alignent, le nombre de collisions se réduit. L'alignement pourrait donc contribuer à préserver le caractère actif de la dynamique.

Si l'activité se maintient, quels sont ces effets ? Une tendance commune observée dans l'ensemble des simulations est qu'elle favorise le maintien de la phase liquide à des densités plus élevées. Mais on sait par ailleurs qu'elle induit cette séparation de phases par motilité. Comment se couplent les effets de haute densité à cette séparation de phases ? Quels en sont les conséquences sur les propriétés de transport au sein des phases denses actives ?

Afin de répondre, sinon à toutes, au moins à certaines de ces questions, nous avons commencé par étudier la cristallisation du système de disques autopropulsés mono-dispersés en la comparant systématiquement avec celle d'un système de disques isotropes passifs. Nous verrons que nous avons obtenu un certain nombre de résultats remarquables concernant la cristallisation, puis la stabilité de la phase cristalline. Ceci nous a conduit à étudier le rôle des défauts dans la phase active dense. Dans la foulée, inspiré par un article de l'équipe de M. Dijkstra [89], nous avons aussi étudié l'effet du dopage d'un cristal passif par un sous-ensemble de particules actives.

Au cours de l'année 2015, une question a soudainement violemment animé la communauté de la matière active. Assez naturellement, suite à la découverte du mécanisme de séparation de phases induites par la motilité, la question s'est posée de savoir ce qui régissait l'équilibre entre les deux phases. Peut-on définir des potentiels thermodynamiques tels que la pression, ou le potentiel chimique ? Un nombre d'articles spectaculaires est paru en l'espace de 6 mois sur ces questions. Ils firent l'objet d'une session spéciale lors du Workshop "Active Liquids" organisé à Leiden, en juillet 2015. Cette activité a motivé la réalisation d'une étude spécifique qui nous a temporairement éloigné de la problématique des phases très denses.

Enfin, nous avons repris l'étude de celles-ci en conduisant les premières expériences de verres actifs tout en mettant à profit l'arrivée des particules de plus grande taille, ce qui nous a permis de réaliser un mélange bi-dispersé de disques autopropulsés. A l'heure de rédiger ce manuscrit, les images ont été acquises et traitées ; malheureusement le temps m'a manqué pour finaliser l'analyse des données. Nous ne serons donc pas en mesure de reporter ici des résultats concernant le verre actif.

Organisation du manuscrit

Le manuscrit s'organise en 5 chapitres, en plus de l'introduction générale.

Le premier chapitre se consacre à la présentation du système expérimental. Le système mis au point par Julien Deseigne a été quelque peu modifié, suite au déménagement de l'expérience de Saclay à Paris. Nous présentons dans ce chapitre les modifications apportées au montage, et le pourquoi de celles-ci. Nous en profitons pour présenter de façon précise le protocole suivi pour assurer la plus grande robustesse possible aux expériences. Enfin, nous y caractérisons la dynamique individuelle et collective des disques que nous comparons à celle reportée par Julien Deseigne.

Le deuxième chapitre concerne la transition de cristallisation. Après une introduction sur la cristallisation des disques durs d'équilibre, nous passons à l'étude de la structure et de la dynamique des systèmes de disques auto-propulsés au fur et à mesure de l'accroissement de la fraction surfacique, que nous mettons systématiquement en regard de celle de disques isotropes. Nous verrons en quoi la transition de cristallisation est modifiée par rapport à celle d'équilibre, et quelles sont les caractéristiques de la phase la plus dense obtenue au cours de cette première étude.

Ceci nous conduira, dans un troisième chapitre, à nous intéresser au rôle des défauts topologiques dans la dynamique à haute densité. Après un rappel de leur rôle dans la fonte des cristaux d'équilibre à deux dimensions, nous tentons de voir à quel point le scénario de fonte par la mesure de la densité de défauts s'applique au cas des disques polaires. Nous avons également préparé dans une enceinte hexagonale un cristal parfait, au sein duquel nous pouvons introduire des défauts de façon contrôlée. Nous verrons que même dans ces conditions optimales de cristallisation, la dynamique du système de disques actifs a de quoi nous surprendre. Cette étude a été étayée par une étude numérique, conduite en collaboration avec Michael Schindler.

Le quatrième chapitre rapporte l'étude que nous avons faite, inspirée par les travaux de M. Dijkstra [89] concernant le dopage d'un cristal passif par une sous population de particules actives. Nous y décrivons deux séries d'expériences. Dans la première, les disques polaires sont déposés de manière isolée dans le cristal et on s'intéresse notamment à leur interaction avec un joint de grain du cristal passif. Dans la seconde, les disques actifs sont introduits sous la forme d'une goutte condensée.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre présente les résultats obtenus, en ce qui concerne la mesure d'une pression mécanique dans un liquide de disques actifs. Ce travail a été mené en collaboration avec un stagiaire, Gaspard Junot et un ATER théoricien, René Ledesma-Alonso. Nous expliquons comment à l'aide d'un système de membranes artificielles, nous avons pu montrer que la pression mécanique d'un système de particules actives dépend explicitement de la membrane et ne peut donc pas servir de variable d'état.

Chapitre 2

Systeme experimental, modele et simulations

L'expérience utilisée au cours de cette thèse a été conçue et montée par Julien Deseigne au cours de la thèse qu'il a effectuée au sein du Service de Physique de l'Etat Condensé, au CEA Saclay (Réf. [19, 20, 21]). Cette expérience a permis de mettre au point un modèle de marcheurs persistants, de comprendre leur dynamique, ainsi que leurs comportements collectifs.

C'est le même dispositif qui a été déménagé à l'ESPCI en 2011, lors de la création de l'équipe EC2M par Olivier Dauchot. Le système expérimental a été quelque peu modifié depuis son état d'origine. Certaines modifications sont liées à sa réinstallation à l'ESPCI, les autres ont été envisagées pour améliorer le dispositif à la lumière de l'expérience acquise.

Dans une première partie nous nous intéresserons au montage actuel. Nous insisterons sur les quelques changements apportés à l'expérience initiale. Nous nous focaliserons ensuite sur la chaîne d'acquisition. Nous verrons en particulier comment l'analyse d'images a été réalisée. Ensuite, nous résumerons les principales caractéristiques du mouvement individuel des marcheurs et leurs propriétés collectives, obtenues dans le cas de l'expérience initiale et dans les nouvelles conditions expérimentales. Pour finir, nous décrirons le modèle théorique des marcheurs, permettant ainsi de les simuler dans la phase liquide.

2.1 Dispositif de disques durs vibrés

Le principe de l'expérience consiste à mettre des disques en vibration, en assurant soigneusement le contact des disques avec le plateau vibrant de telle sorte qu'ils réalisent les dynamiques souhaitées. Deux types de disques ont été imaginés par

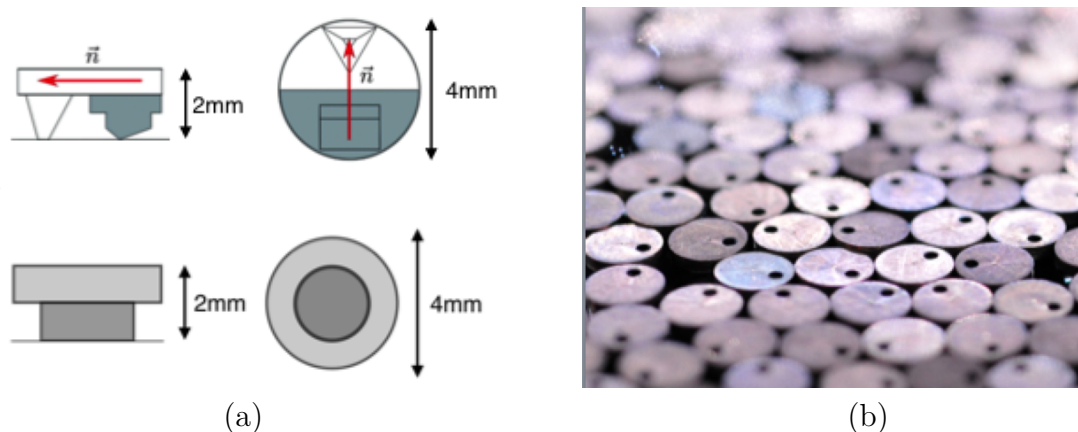


FIGURE 2.1 – **Schéma et photo d’ensemble des disques durs ISO et SPP.** Figures extraites de la Réf. [19]. (a) : Schéma d’un disque dur SPP (haut) et d’un disque dur ISO (bas) ; dans le cas du disque dur SPP, le contact avec le plateau vibrant est ponctuel et métallique à l’avant, linéaire et en caoutchouc à l’arrière ; le vecteur \vec{n} indique la polarité de la particule ; dans le cas du disque dur ISO, le contact avec le plateau vibrant est un cylindre. (b) : photo d’un ensemble de disques durs SPP : on distingue bien le point noir qui permet de repérer la polarité de la particule.

Julien Deseigne. Le premier vise à modéliser un mouvement dirigé persistant ; par la suite nous qualifierons ces disques d’“auto-propulsés”, ou bien “disques SPP” (*Self Propelled Particles*). Le second type de disques vise à servir de système de référence, en s’approchant au plus près d’un système de disques d’équilibre. Ils sont donc conçus pour exécuter un mouvement Brownien. On appellera ceux-ci les disques “ISO” (Isotropes).

2.1.1 Les disques durs

Environ 10 000 disques ont été fabriqués au cours de la thèse de Julien Deseigne, en associant une société de micro-décolletage et une société spécialisée dans le moulage et l’encollage de caoutchouc. Nous disposons de disques (ISO et SPP) ayant un diamètre de 4 mm pour une épaisseur de 2 mm, composés d’un alliage de cuivre très dur en cuivre-béryllium. Par ailleurs, un de nos objectifs initiaux était d’étudier des phases denses bidisperses. Nous avons donc fait fabriquer par ces mêmes fournisseurs des disques de même épaisseur, mais de 5 mm diamètre. Les disques SPP, visibles sur la figure (2.1-a, haut), présentent deux pattes, avant et arrière, différentes. La patte avant fait corps avec le disque, et réalise un contact ponctuel avec le plateau vibrant. La patte arrière est en caoutchouc. Collée chimiquement sur le disque, elle réalise un contact linéaire. Vu du dessus, le disque dur SPP est un disque avec un

point noir apparent, indiquant sa direction. Quand le disque repose sur ses deux pattes sur le plateau en vibration, il se déplace avec persistance de la patte en caoutchouc vers la patte métallique. Nous détaillerons la dynamique à la fin de ce chapitre.

Les disques ISO, visibles sur la figure (2.1-a, bas), font corps avec un cylindre dont la section est en contact avec le plateau vibrant.

Dans les deux cas, les pattes des disques ne dépassent pas de la circonférence de ceux-ci. La seule interaction qui existe entre ces disques est donc une interaction répulsive de corps dur.

2.1.2 Dispositif de vibration

Les disques décrits ci-dessus sont des objets macroscopiques, insensibles à l'agitation thermique. Nous les mettons en mouvement grâce à la vibration mécanique produite par un dispositif de vibration. Ce dispositif se compose d'un vibreur industriel de marque LDS, d'un guidage linéaire et d'un plateau mis en vibration (voir figure (2.2)) .

Le vibreur, alimenté et asservi par une alimentation couplée à un contrôleur, repose sur des planches de bois isolées du sol par des amortisseurs en caoutchouc. Ces planches sont maintenues au sol par des briques de plomb. A la tête du vibreur, visible sur la figure (2.2), est fixée une tige transmettant la vibration à un guide à air comprimé. La flexibilité de cette tige permet de ne transmettre que les vibrations verticales. Le guidage à air (figure (2.3)), de section carrée, permet quant à lui de supprimer les modes de rotation. Le plateau vibrant est fixé sur une en-base de



FIGURE 2.2 – **Photo du montage.** (a) : Vue du montage global. Le vibreur est installé sur des planches maintenues par des briques en plomb, au-dessus duquel est fixée une tige qui transmet la vibration verticalement au plateau. (b) : Photo du vibreur.

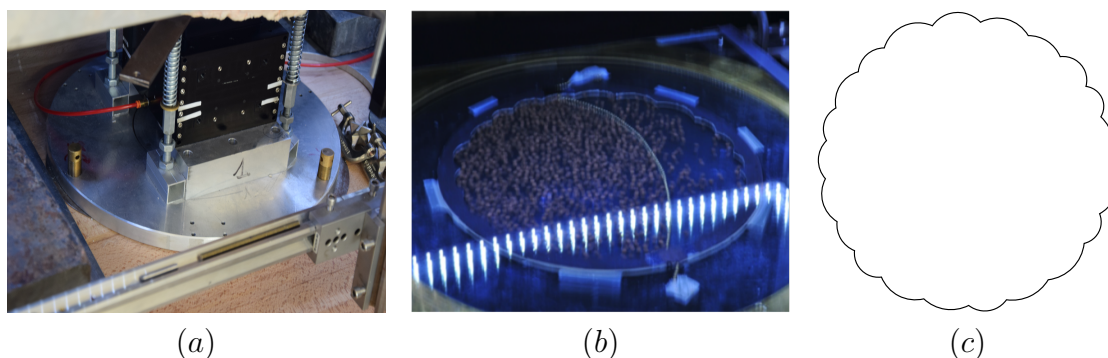


FIGURE 2.3 – **Photos du montage.** (a) : Base circulaire en aluminium qui repose sur 3 points sur la table visible sur la vue de la figure (2.2-a). Cette base circulaire fait corps avec le châssis extérieur du guide d'air (boîte noire). Sur la photo on aperçoit deux des quatre ressorts de compression dont la fonction est de supporter le poids du plateau vibrant. (b) : sur cette photo on y voit la vitre confinant les disques verticalement, sur laquelle est scotchée l'arène en forme de fleur. (c) : géométrie de l'arène qui confine les disques latéralement.

forme conique, elle-même fixée à la partie mobile du guide à air. Enfin, le plateau accueille une vitre circulaire, sur laquelle sont disposés les marcheurs. Le châssis du guide à air est encastré sur une base circulaire (figure (2.3)). Cette base repose sur trois vis, espacées de 120° . Le contact ponctuel entre ces vis et la table permet le réglage de l'horizontalité statique du plateau.

La masse du plateau vibrant pouvant à long terme abîmer le dispositif de centrage de la bobine du vibreur, Julien Deseigne avait initialement installé des tendeurs qui suspendaient le plateau et la partie mobile du guide à air. L'idée était que le vibreur ne porte pas la masse, se contentant de la vibrer. Ces tendeurs étaient assez usés et avaient l'inconvénient de ne permettre aucun réglage. Nous avons donc choisi de les remplacer par des ressorts en compression, placés entre la base du châssis et des supports attachés au plateau vibrant (voir figure (2.3-a)). Sous les ressorts sont installés des écrous permettant d'ajuster leur compression.

2.1.3 Confinement des disques

Le confinement des disques est nécessaire, à la fois latéralement pour qu'ils ne quittent pas le plateau vibrant, et verticalement pour éviter qu'ils se retournent.

Pour confiner les disques verticalement, une vitre (figure (2.3-b)) repose sur trois points extérieurs au plateau et est donc isolée de la partie vibrante. Ces trois points sont réglables en hauteur indépendamment les uns des autres, à l'aide de vis micrométriques qui ajustent l'écart entre la vitre et la surface des disques. La distance typique entre le sommet des disques et la vitre est de 0.2 mm. Au cours du réglage, il

est essentiel d'éviter un contact direct entre la vitre et les marcheurs et d'assurer un espacement aussi homogène que possible, afin de garantir une répartition homogène des disques à la surface du plateau lors des expériences.

Le tout premier dispositif prévoyait de confiner les disques au sein d'une arène circulaire. Julien Deseigne avait alors pu observer, et c'est maintenant un fait bien connu, que dans cette configuration les particules autopropulsées ont tendance à séjourner longtemps auprès des bords. En effet, la collision avec le bord ne les réoriente pas suffisamment, voire pas du tout, ce qui provoque une accumulation de particules le long des parois. Une réflexion avait alors été engagée pour imaginer une forme d'arène activant la circulation des particules vers le centre de l'arène. L'idée d'une arène pourvue de coins ou d'angles trop aigus a été écartée pour que les particules ne s'y trouvent pas bloquées. Julien Deseigne avait finalement proposé un modèle d'arène en forme de fleur, dont les lobes en forme de demi-cercles se suivent le long du périmètre. Grâce à cette nouvelle configuration, les disques autopropulsés longent les bords d'un lobe puis sont réinjectés vers le centre de l'arène.

L'arène dessinée par Julien Deseigne était régulière : tous les lobes avaient le même diamètre. En reprenant son expérience, nous nous sommes demandés dans quelle mesure la taille de ces lobes pouvait influencer la dynamique collective. De plus, l'arène initiale était en laiton et collée à la vitre supérieure, ce qui contraignait à la fois la manipulation et les modifications éventuelles du protocole expérimental.

Partant de ces observations, nous avons choisi de redessiner une arène de diamètre $D = 300$ mm, avec des lobes de tailles aléatoires (voir figure (2.3-c)). Cette nouvelle arène a été découpée avec soin en carton plume, assurant de la rigidité tout en permettant d'alterner plus facilement la fixation de l'arène sur la vitre ou sur le plateau vibrant en fonction des expériences. Ce nouveau modèle plus flexible a facilité la conduite des expériences à mener.

2.1.4 Protocole expérimental

Cette expérience nécessite d'assurer l'homogénéité spatiale de la vibration de quelques dizaines à quelques milliers ($\sim 3\,000$) de disques. Pour assurer le bon déroulement des expériences, permettre de les reconduire et produire des résultats fiables, les réglages du dispositif doivent respecter un protocole expérimental aussi précis que possible.

Manipulation des disques.

Nous avons mis en place une solution pour déposer efficacement les quelques milliers de disques que nous manipulons sur le plateau vibrant (figure (2.4)). En effet, manipuler chaque particule à l'aide d'une pince à épiler comme nous le faisons dans un premier temps s'avère long et fastidieux. La technique que nous utilisons nous permet de déposer jusqu'à 200 disques à la fois. Les disques ont tendance à

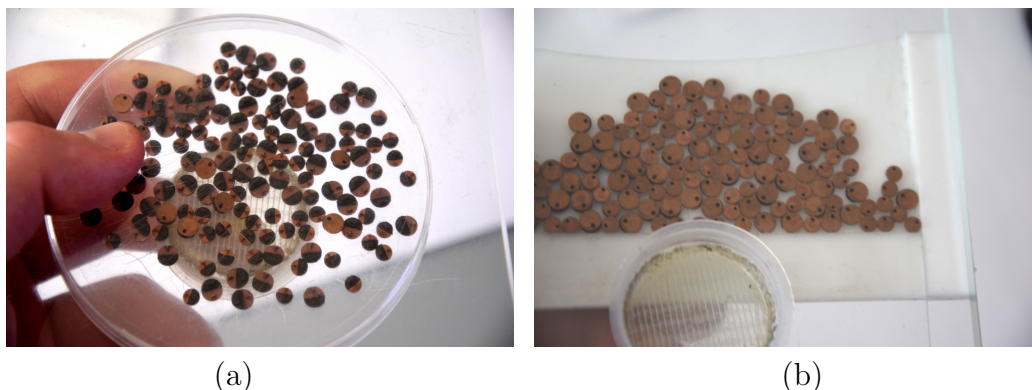


FIGURE 2.4 – **Étapes dans la manipulation des disques.** (a) : Disques secoués et retournés dans une boîte de pétri. (b) : Disques debout prêts à être déposés sur le plateau

se retourner lorsqu'ils sont secoués, c'est cette propriété que nous exploitons. Nous déposons plusieurs dizaines de disques dans une boîte que nous retournons sur une plaque. Les disques se trouvent alors à l'envers. Nous les retournons ensuite sur une plaque conçue pour pouvoir être bloquée et ajustée sur le bord du plateau vibrant, avant de les pousser délicatement vers l'intérieur de l'arène.

Réglages.

Il est essentiel de s'assurer des bons réglages de l'expérience, car nous prévoyons de réaliser des expériences à différentes densités de particules ISO comme références pour étudier le comportement des particules SPP à ces mêmes densités. Il est alors nécessaire et essentiel que le comportement du liquide de particules ISO se rapproche autant que possible d'un système à l'équilibre thermodynamique : la densité doit être la plus homogène possible. Après avoir soigneusement assuré l'horizontalité statique du plateau à l'aide d'un niveau à bulles et des trois vis de réglage, l'homogénéité des particules ISO sur le plateau en vibration est un indicateur fiable d'un bon réglage de départ pour l'expérience.

L'expérience est assez délicate à régler car c'est un ensemble de 10 vis qui permet d'ajuster l'homogénéité des disques sur le plateau.

- 3 vis (V_B) installées sur la base, et espacées de 120° agissent directement sur l'horizontalité statique du plateau.
- 4 vis (V_C) permettent de comprimer les quatre ressorts modulant localement la vibration
- 3 vis (V_V) permettent de gérer la hauteur entre la vitre et le plateau

Les différents éléments du montage sont interdépendants, chaque vis ayant une influence décisive sur l'horizontalité de l'expérience ou sur le parallélisme de la vitre supérieure. On représente l'influence de chacune de ces vis par une "matrice de

couplage” dans lesquelles les colonnes représentent respectivement l’action des vis V_C , V_B , V_V , dans la base (V_C, V_B, V_V)

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 \\ 1 & 1 & 1 \end{pmatrix}$$

Détaillons chacune des colonnes :

- La première colonne concerne l’action des vis sur les ressorts de compression. La fonction première des ressorts est de supporter le poids du plateau, mais selon leur compression, ils permettent également d’en moduler la vibration. Ainsi, les ressorts peuvent être un paramètre de réglage pour parvenir à un état homogène du plateau vibrant. Comme le définit la matrice ci-dessus, les ressorts sont couplés à l’ensemble des autres composants du système. Lorsqu’ils sont comprimés, les ressorts soulèvent les plaques métalliques, soulevant ainsi le plateau. En modulant la hauteur du plateau, l’écart entre celui-ci et la vitre qui confine les disques change. Le réglage de la vitre est donc à redéfinir, ainsi que l’horizontalité, qui est nécessairement affectée par l’ajustement de la hauteur des plaques.
- La seconde colonne concerne le réglage de la base du montage. Si l’on modifie l’horizontalité, la hauteur entre la plateau vibrant et la vitre utile au confinement s’en trouve nécessairement modifiée.
- La dernière colonne concerne le réglage de la vitre qui doit permettre de confiner les disques sans qu’ils se retournent et sans les freiner. Il affecte peu le réglage des autres vis.

Le montage est complexe à plusieurs égards. D’une part, chaque composant a son propre rôle dans l’expérience, et il n’est pas simple de comprendre l’influence de chacun, indépendamment des autres. Une autre difficulté majeure, rencontrée lors de la prise en main de l’expérience, aura été le temps de réponse relativement long du système. En effet, l’observation d’un changement après avoir modifié la compression des ressorts peut parfois prendre plusieurs minutes. Ainsi, pensant être loin de l’équilibre recherché, il peut être tentant de modifier à nouveau les réglages alors même que le système n’a pas relaxé. On peut ainsi s’éloigner de l’équilibre en pensant s’en rapprocher. Le réglage devient par conséquent difficile à lire et à interpréter. Par ailleurs, l’équilibre expérimental est précaire car il est sensible à la mécanique du montage, il nous fallait donc vérifier les réglages à la mise en place de chaque nouvelle expérience.

Ces difficultés s’ajoutent aux contraintes induites par la manipulation des disques, sensibles à la moindre excitation. Nous l’avons vu précédemment, l’installation des

disques dans l'arène réclame beaucoup de minutie et une grande concentration.

Nous sommes parvenus à réaliser de très belles séries d'expériences malgré ces difficultés grâce au protocole que nous avons établi.

Protocole.

1. La première étape du réglage consiste à s'assurer de l'horizontalité statique du plateau. Même si l'horizontalité du plateau ne garantit pas à elle seule l'homogénéité de la vibration, partir à chaque fois d'une configuration horizontale semble être un bon point de départ pour reproduire les réglages suivants.
2. Pour vérifier l'efficacité de ce premier réglage, nous disposons des disques ISO sur environ 40% de la surface du plateau. En effet, en dessous de ce pourcentage il est difficile d'observer l'homogénéité des particules et au-delà de ce pourcentage la concentration peut masquer certaines hétérogénéités. Toutefois, si le réglage de l'expérience se fait à 40% en fraction surfacique, il n'est bien entendu pas exclu de réaliser ensuite des expériences à des fractions de valeurs inférieures.
3. L'étape suivante concerne le positionnement de la vitre, de façon à laisser la distance minimale pour que les disques ne se retournent pas. A ce stade, l'objectif est de minimiser le couplage entre le réglage de la vitre et des autres éléments.
4. On règle ensuite les ressorts pour moduler la vibration locale du plateau. Il est souvent nécessaire de vérifier l'horizontalité statique au cours du réglage.
5. Une fois qu'un état homogène a été trouvé, le réglage de la hauteur de la vitre peut être fait. La hauteur de la vitre est adaptée à la densité de disques sur le plateau. La vitre est placée plus basse dans les phases les plus denses car le nombre de disques et le risque de chevauchements sont plus importants. Lors de cette étape il est important de maintenir l'état homogène trouvé quand la vitre était relevée, malgré les frottements entre les disques et la vitre. L'équilibre trouvé à l'issue de cette dernière étape pourra être utilisé pour les expériences sur les deux types de particules ISO et SPP.

Pour conclure cette première partie, certaines modifications ont été apportées à l'expérience initiale, sans en changer le principe : transmettre une vibration verticale à des grains athermiques, contrôler leur homogénéité et leur confinement. Le nouveau protocole mis en place permet d'exploiter au mieux le montage. Pour étudier de plus grandes densités de particules, nous avons réfléchi à une nouvelle arène de confinement, permettant de comprimer les disques déjà disposés sur le plateau. Cette nouvelle arène n'a pas encore été testée mais nous pensons qu'elle pourrait faciliter la manipulation à de plus grandes densités.

2.2 Acquisition et traitement d'image

2.2.1 Dispositif d'acquisition

Nous avons mis au point un système d'acquisition optimal pour étudier le comportement des particules.

L'éclairage est assuré par des guirlandes de LEDs installées sur les bords extérieurs du montage. Elles offrent une lumière suffisante et homogène. Leur fréquence, très supérieure à la fréquence d'acquisition, permet d'enregistrer des images de bonne qualité. L'ensemble du montage est entouré de rideaux noirs filtrant les sources parasites de lumière extérieure.

L'acquisition des images se fait par une caméra placée au-dessus du plateau et reliée à un ordinateur. Les images sont enregistrées en échelle de gris codées en 8 bits. Les images sont prises à une fréquence de 25 ou 30 images par seconde pour que le suivi des disques se fasse correctement. Le temps d'acquisition des images est variable, mais toujours déterminé de sorte que les disques aient le temps d'explorer suffisamment l'arène. Les caractéristiques propres à chacune des expériences seront rappelées dans les chapitres suivants.

Les expériences génèrent un très grand volume d'images et de données. Ainsi, à 30 images par seconde pour des expériences d'une durée de 10 minutes, nous produisons 17 000 images. Un disque dur SSD nous permet d'écrire rapidement les images en format binaire, avant de les extraire dans un format bitmap, qui préserve la qualité de l'image enregistrée. Les images ont chacune un poids de 4 Mo, ce qui représente pour 17 000 images environ 70 Go. Nous avons étudié près de 64 points en fraction surfacique, uniquement pour l'étude de la transition de cristallisation (chapitre 3). Dans les conditions décrites ci-dessus, cela représente au total près de 1 088 000 d'images et 4.5 To de données.

Après l'acquisition, nous passons à l'analyse des images.

2.2.2 Analyse d'images

Le code d'analyse d'images a totalement été ré-écrit au cours de cette thèse pour des raisons pratiques. Nous savions que nous aurions des disques à détecter dans des zones très denses, avec peu de contraste. Nous nous devions d'écrire un code robuste permettant de détecter les disques à toutes densités. Le critère prééminent dans la conception du code est le temps à accorder à la détection des disques pour une image. Détecter l'ensemble des particules présentes sur les images est certainement possible en usant au maximum de tous les critères d'analyse d'image, mais ce 100% de réussite dans la détection a un coût en temps non négligeable, si bien qu'il nous

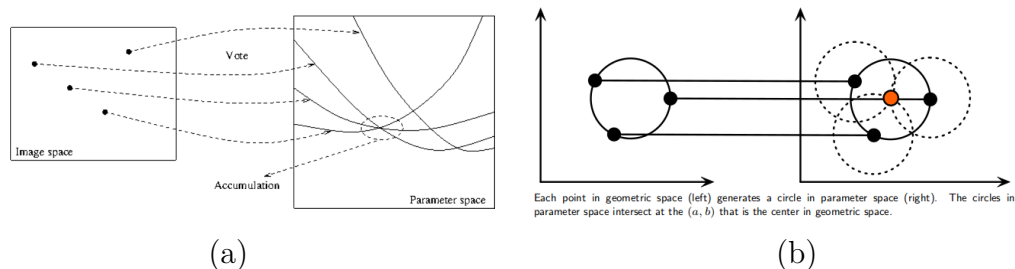


FIGURE 2.5 – **Transformée de Hough.** Figures extraites de la Réf. [54, 74]. (a) : les points de l'espace de l'image votent pour un ensemble de points dans l'espace des paramètres. (b) : exemple pour un cercle. A des points détectés sur le cercle dans l'espace de l'image (figure de gauche), on leur associe un cercle de rayon R dans l'espace des paramètres (figure de droite).

a été nécessaire de faire quelques concessions (perdre un peu de disques lors de la détection mais obtenir un code efficace en temps).

La détection de disques dans une image est un problème récurrent en analyse d'images et la transformée de Hough est très efficace pour résoudre ce problème.

La transformée de Hough : identifier des objets circulaires dans une image.

La transformée de Hough permet de détecter des objets géométriques plus ou moins complexes (droite, cercle, ou autres objets ...). Ces objets sont associés à une équation du type $f((x, y, \dots); (a, b, \dots)) = 0$. Les coordonnées (x, y, \dots) vivent dans l'espace de l'image, et les paramètres (a, b, \dots) dans un espace dual. La transformée de Hough connecte ces deux espaces. Généralement la métaphore employée pour illustrer cette opération est celle de points de l'espace de l'image qui votent pour des points dans l'espace des paramètres. Le point de l'espace des paramètres ayant reçu le plus de votes sera le candidat élu et le meilleur pour vérifier l'équation (2.2.2) (voir figure (2.5-a)).

Il est au préalable nécessaire de trouver les coordonnées des pixels du contour des objets que nous recherchons dans l'image. L'utilisation d'opérations associant des opérations de morphologie, des filtres, des gradients permettent de trouver les coordonnées des contours des objets.

Supposons que nous ayons connaissance des coordonnées dans l'espace de l'image de certains points du contour, l'opération consiste alors à associer une courbe dans l'espace des paramètres d'équation $f((a, b, \dots); (x, y, \dots)) = 0$ à chaque point détecté du contour. Dans l'espace des paramètres, plusieurs points se retrouvent à l'intersection de différentes courbes. Les coordonnées du point accumulant le plus d'interceptions correspondent au meilleur jeu de paramètres (a, b, \dots) .

La figure (2.5-b) illustre la recherche du centre de coordonnées (a, b) d'un cercle

de rayon R dans l'espace réel. Admettons que nous connaissons les coordonnées (x, y) de plusieurs points situés sur la périphérie du cercle et que nous avons une estimation du rayon R du cercle. Nous associons alors à chaque points un cercle de rayon R dans l'espace des paramètres. L'ensemble des cercles se coupent au point de coordonnées (a, b) qui est le centre du cercle à trouver dans l'espace réel.

Dans le cas où nous recherchions le centre d'un cercle dont nous n'avons pas *a priori* d'estimation du rayon, l'espace des paramètres devient celui de l'ensemble a, b, R . Le meilleur point (a, b, R) est alors à rechercher dans un espace en 3 d. La méthode ne change pas, et l'objet considéré sera cette fois-ci un cône.

Dans la littérature il existe différentes variantes permettant en particulier de gagner en efficacité en temps de calculs. Notre code d'analyse d'images s'articule autour de la fonction *imfindcircles* programmée par Matlab dans le but de détecter des cercles dans une image. Par défaut elle est programmée selon la variante appelée *phase-coding*. Le principe de toutes ces variantes repose sur la méthode très générale décrite ci-dessus. (Réf. [98, 1, 18])

Étapes du code pour détecter les disques :

- Dans la première phase, nous appliquons sur l'image brute un masque construit de façon à éliminer les bords extérieurs de l'arène et à obtenir en sortie une image la plus contrastée possible entre les disques à détecter et l'arrière plan.
 - Dans la seconde phase, l'image modifiée est exploitée par la fonction *imfindcircles*. Outre l'image, cette fonction prend en argument différents paramètres tels que l'intervalle de rayons en pixels dans lequel nous estimons trouver les disques et un paramètre de sensibilité qui est un nombre compris entre 0 et 1. En fonction de la valeur de ce dernier paramètre, la détection sera plus ou moins efficace et bruitée. Pour une valeur de 1 l'algorithme trouve une multitude d'objets qui lui semblent quasi-circulaires et *a contrario* une valeur de 0 ne détecte rien. La valeur avec laquelle nous travaillons est de 0.97 ; elle s'avère très robuste pour traiter l'ensemble de nos images. A l'issue de cette étape nous récupérons les centres et les rayons des disques détectés. La plupart des cercles identifiés correspondent effectivement aux disques dans l'image. Certains cerles peuvent être faux et ne pas correspondre à des disques ; nous les supprimerons par la suite.
Il se peut aussi que deux disques concentriques mais de rayons différents soient détectés pour un même disque. On les détecte, et on les remplace par un disque correspondant à la moyenne des deux (en position et taille).
- ⇒ Une fois ce premier tri identifiant les bons et les mauvais cercles, nous trions les disques selon qu'ils soient petits, grands, ISO ou SPP.

Lorsqu'on travaille :

- Avec des ISO :
 - en monodisperse, le code est terminé.
 - en bidisperse, on scinde les deux populations entre les grands et les petits. L'intervalle des rayons des disques petits [13 :15] (en pixels) ne se chevauchent généralement pas avec celui des grands disques [16 :18]. Il n'est pas exclu que pour une image un petit soit détecté avec un rayon dans l'intervalle des grands ou inversement. A la fin de l'étape du *tracking* nous attribuons le caractère petit ou grand à un disque en fonction de la moyenne de son rayon détecté au cours du temps. Après ce tri, le code est terminé.
- Avec des SPP :

Après l'étape éventuelle de tri sur les tailles des disques, il faut détecter et associer les points noirs (indiquant leur orientation) à chaque disque. Pour une meilleure détection, on scinde les disques en deux populations : ceux de la région du *bulk*, et ceux situés sur la périphérie.

On traite d'abord un à un les disques du *bulk*. On se focalise uniquement sur une sous région de l'image centrée et de taille correspondant au disque que l'on traite. On est alors en mesure de détecter le point noir et de l'associer au disque (figure 2.6). A l'issue de cette première boucle, certains disques n'ont pas eu leur point noir détecté. On les traite alors avec les autres disques de la périphérie mais en appliquant des tests (de formes, de tailles, d'intensité) plus contraignants.

Efficacité du code.

Plusieurs opérations se succèdent. L'opération associée à la fonction *imfindcircles* dépend uniquement de la taille de l'image prise en entrée, et non du nombre de disques à chercher. Cette opération peut être assez gourmande en temps. Puis, deux boucles se succèdent : l'une pour détecter le point noir des disques du *bulk* et l'autre qui se concentre à la fois sur les disques de la périphérie et sur ceux du *bulk* dont le point noir n'a pas été correctement détecté.

L'enjeu de la détection est de pouvoir maîtriser le temps durant lequel le code traite une image. Par exemple, en travaillant avec un seul processeur, il faut compter environ 6 secondes par image pour la recherche des disques SPP. C'est assez conséquent, étant donnée la centaine de milliers d'images à traiter. Toutefois les images sont indépendantes, on peut alors paralléliser la recherche des disques et les traiter simul-

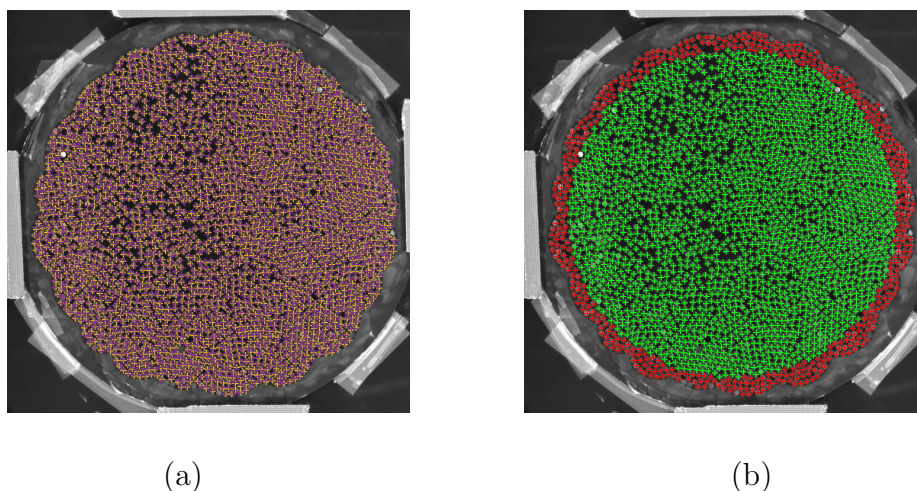


FIGURE 2.6 – **Détection des disques et Région d'intérêt.** (a) : Centres et points noirs des disques SPP détectés. (b) : Les particules vertes sont dans la région d'intérêt, les rouges sont en dehors.

tanément sur différents processeurs, ce qui fait chuter le temps de l'opération par rapport au nombre d'images à traiter à moins de 1s/image avec la configuration de nos ordinateurs.

Une fois que les disques ont été identifiés à chaque pas de temps, nous les *trackons* au cours du temps.

2.2.3 Suivre les disques au cours du temps

L'algorithme utilisé est celui écrit par Crocker et Weeks (Réf. [96]). Il est très répandu pour suivre des objets dont la dynamique est brownienne. C'est le cas des disques durs ISO qui seront *a priori* facilement détectés. Pour s'assurer d'un bon suivi des disques SPP il est nécessaire de travailler à une fréquence d'acquisition suffisante (25 Hz). Dans ce cas, le code est robuste et peut être aussi implémenté pour le suivi des disques SPP.

Le code prend en entrée les positions et le temps des disques à suivre ainsi que des paramètres tels qu'une estimation de la distance maximale parcourue entre deux images, la dimension d'espace dans laquelle nous souhaitons effectuer le suivi, et un paramètre de mémoire qui permet de pouvoir extrapoler et connecter deux trajectoires. En effet, il se peut qu'au cours du temps la position d'un disque ne soit pas détectée. Ainsi, si le nombre d'images consécutives où le disque ne serait pas détecté est inférieur ou égal au paramètre de mémoire, l'algorithme tente d'extrapoler sa trajectoire et de la connecter à la position d'un disque détecté par la suite.

En sortie nous avons trois types de trajectoires :

- des trajectoires complètes si les disques ont correctement été détectés et suivis au cours du temps.
- des trajectoires dont la longueur temporelle est celle de l’acquisition mais présentant une ou plusieurs positions manquantes.
- des trajectoires dont la longueur temporelle est inférieure au temps de l’acquisition dans le cas où l’algorithme n’aurait pas réussi à coller deux morceaux de trajectoires.

Le code renvoie autant de labels de disques que de trajectoires considérées comme uniques. Il se peut donc qu’il y ait plus de labels que de disques.

L’algorithme Weeks et Crocker ne peut être utilisé comme tel, car tout au long du suivi des particules, nous devons pouvoir transporter des caractéristiques propres à chacune d’elles : diamètre, type en cas de mélange (grande, petite, ISO, SPP), orientation. Le code développé par notre équipe se devait de tenir compte de cette particularité. Par ailleurs, le suivi des particules se fait en deux étapes. La première étape permet de trouver les particules correctement suivies et celles dont le suivi se serait mal déroulé. Pour ces dernières, nous tentons de les suivre à nouveau lors de la seconde étape. Leur nombre étant souvent peu conséquent, l’algorithme de Weeks et Crocker est capable de construire correctement les trajectoires.

A la toute fin de cette opération de suivi des disques, les labels, les trajectoires, et les autres informations attachées à chaque disque sont chargées dans une base de données MySQL. L’utilisation d’une telle base est tout à fait pertinente vu la quantité de données accumulées et l’efficacité de la connexion entre MATLAB et MySQL.

La structure des bases de données varie selon la nature de ce que l’on doit calculer. Nous travaillons avec trois bases différentes. La base principale regroupe les labels des particules, leurs positions, leurs orientations (pour les SPP), des champs comme l’aire de la cellule de Voronoi, le nombre de voisins, leur appartenance à la région d’intérêt (ROI)... Une seconde base regroupe l’ensemble des labels des disques présents pour une expérience et leurs propriétés (taille, type) qui ne changent pas au cours du temps. La dernière regroupe les résultats de la triangulation, c’est-à-dire le réseau de voisinage.

Définition de la Région d’intérêt (ROI)

Définir une ROI (voir figure (2.6-b)) permet de minimiser l’influence des bords sur le calcul des quantités qui nous intéressent.

La ROI que nous nous sommes donnée se base uniquement sur un critère de distance par rapport aux bords de l’arène. Il s’agit d’un cercle au centre de l’arène qui exclut toutes les particules à 2 diamètres de disques du bords. Elle garantit un nombre élevé de disques à prendre en compte, et limite les effets de bords. En base de données un disque porte un label 1 s’il appartient à la ROI, sinon 0. Cette ROI a

été utilisée dans le cadre des calculs des expériences sur la cristallisation (chapitre 3), et sur les expériences de dopage (chapitre 5).

2.3 Comportement des disques dur polaires et isotropes

L'expérience ayant été changée au niveau de sa structure, nous rappellerons les principales caractéristiques des dynamiques individuelles et collectives observées au cours de la thèse de Julien Deseigne, avant de présenter les comportements observés dans nos conditions expérimentales.

Expériences menées par Julien Deseigne

Au cours de sa thèse, Julien Deseigne a conçu les disques que nous avons décrits précédemment. Nous avons caractérisé leurs dynamiques individuelles et étudié leurs dynamiques collectives. Le résultat majeur de sa thèse est d'avoir mis en évidence l'émergence d'un mouvement collectif. L'alignement entre les disques à l'origine de ce mouvement résulte de la présence d'un couple exercé sur les disques par le plateau vibrant lorsque le déplacement du disque et son orientation ne sont pas alignés. Nous rappelons ici les principales observations faites par J.Deseigne avant de les confronter à nos propres observations dans le dispositif expérimental modifié.

Les expériences avaient été réalisées dans une arène en forme de fleur régulière, de rayon intérieur 180 mm. L'excitation produite par le vibreur était sinusoïdale à la fréquence $f_{vib} = 115$ Hz, et pour différentes accélérations $\Gamma \in [2 : 3.7]$, où $\Gamma = A(2\pi f_{vib})^2/g$, avec A l'amplitude de la vibration. La fréquence d'acquisition était fixée à $f_{acq} = 25$ Hz pour les expériences de disques polaires et à 20 Hz pour des disques isotropes. L'échelle des temps était $\tau_0 = 1/f_{vib}$ et celle des distances en diamètre (d) des disques. Les comportements collectifs avaient été caractérisés pour des fractions surfaciques $\Phi \sim 0.47$.

Quelques trajectoires typiques ont été représentées en parallèle pour des disques polaires (figure (2.7-b)) et pour des disques isotropes (figure (2.7-a)). Des flèches noires sont attachées aux disques, montrant la direction de leurs déplacements entre deux images successives. Pour les disques polaires, une flèche rouge indique la direction de leur polarité.

Les trajectoires des disques isotropes sont typiques de marches aléatoires Browniennes, ce qui signifie que le disque avance en effectuant des sauts qui semblent totalement décorrélés sur des distances plus ou moins grandes par rapport à leur taille.

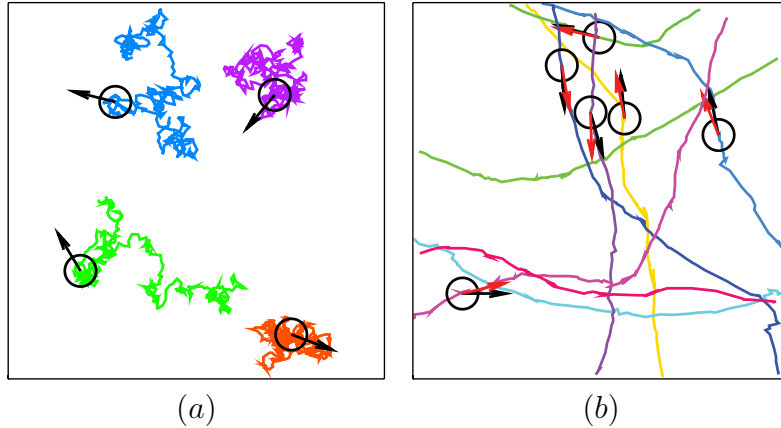


FIGURE 2.7 – **Trajectoires de disques individuels.** Images extraites de la thèse de J.Deseigne (Réf. [19]). Les figures (a) et (b) ont une taille de $12d \times 12d$, les disques avancent dans la direction de la flèche noire, et la polarité des SPP est indiquée par la flèche rouge. L'accélération était fixée à $\Gamma = 2.7$. (a) : Quelques ISO effectuent des marches aléatoires browniennes. (b) : Quelques SPP marchent avec persistance dans une direction.

Les trajectoires pour les disques polaires montrent des portions plus linéaires, ce qui correspond à une marche persistante. On observe un faible désalignement entre les deux flèches (noires et rouges) et des portions de trajectoires quasi linéaires. Cela indique que les disques avancent dans la direction de leur polarité, principalement sur des temps courts, puis réorientent leur direction sur des temps plus longs.

Ces observations ont été quantifiées par Julien Deseigne et sont synthétisées sur la figure (2.8). Pour estimer la vitesse $\langle v \rangle$ des disques polaires, on considère la distribution $\|\Delta r(t, t + \tau)\|/\tau$ (figure 2.8-a). Aux temps très courts, le mouvement est très erratique, et la distribution est large. Aux temps plus longs, la distribution se pique autour d'une valeur indépendante de τ : le mouvement est balistique et la position du pic permet de déterminer la vitesse. L'orientation de la particule est caractérisée par l'angle θ que fait la polarité avec l'axe des abscisses (dans le repère de l'image). La particule présente une dynamique diffusive. Le coefficient de diffusion D_θ est obtenu à partir de la rotation quadratique moyenne $\langle \Delta \theta^2(\tau) \rangle$ qui montre un comportement linéaire en τ aux différentes accélérations Γ .

La figure (2.9) présente la dépendance de la vitesse nominale $\langle v \rangle$, du coefficient de diffusion angulaire D_θ et de la longueur de persistance $\xi = \frac{\langle v \rangle}{D_\theta}$ avec l'accélération Γ . Les disques acquièrent une vitesse significative pour $\Gamma > 2$ qui sature rapidement quand $\Gamma > 3$. Le coefficient de diffusion, au contraire, croît régulièrement avec Γ . Il en résulte que la longueur de persistance est maximale vers $\Gamma \sim 2.7$ et vaut environ 15 diamètres de disques, puis décroît assez rapidement lorsque Γ augmente pour atteindre quelques diamètres de disques. Par ailleurs, on observe de la disparité dans

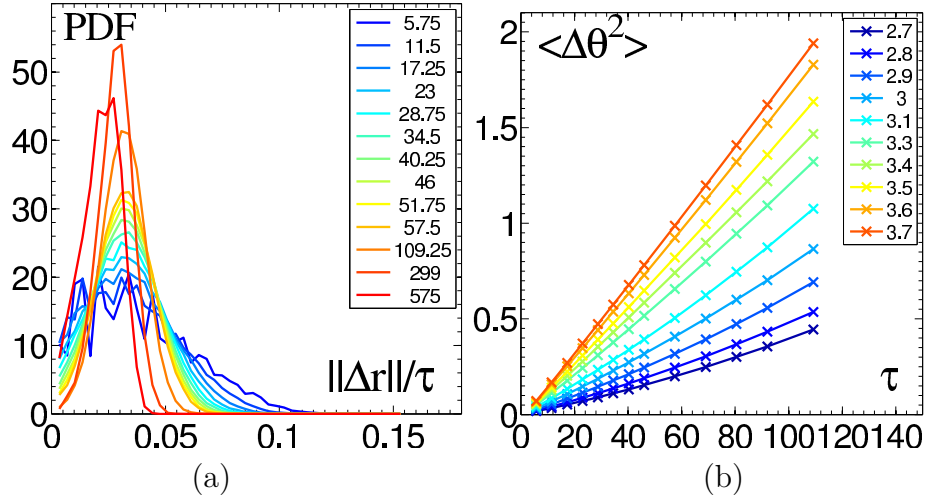


FIGURE 2.8 – **Mesures quantitatives du déplacement des disques SPP.** Figures extraites de la Réf. [21]. (a) : distributions des déplacements sur différents incréments de temps pour mesurer une vitesse pour une accélération de $2.7g$. Le code couleur va du bleu au rouge pour des incréments de temps τ allant de $5.75\tau_0$ à $575\tau_0$. (b) : $\langle \Delta\theta^2(\tau) \rangle$ pour différentes accélérations. Le code couleur est fonction de l'accélération.

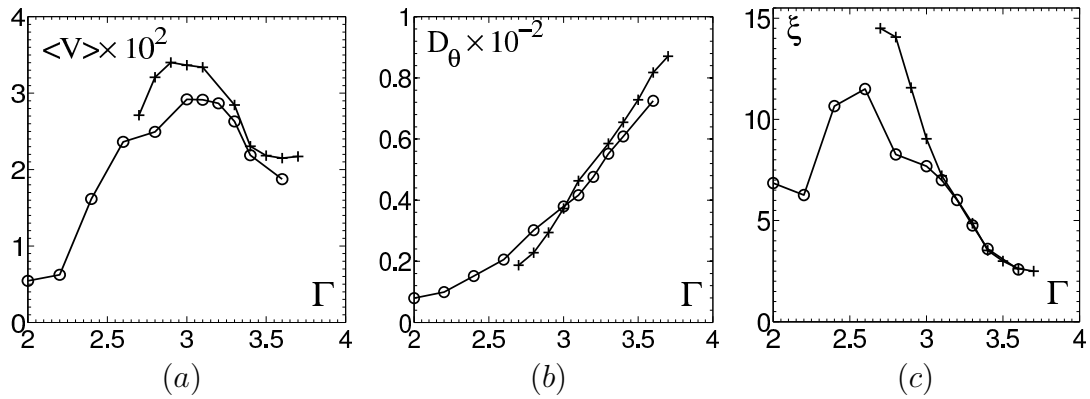


FIGURE 2.9 – **Contrôle en accélération.** Figures extraites de la Réf. [21]. Résultats pour deux séries d'expériences différentes schématisées par des "+" ou des "o". (a) : Vitesse moyenne nominale des disques SPP en fonction de Γ . (b) : Coefficient de diffusion angulaire en fonction de Γ . (c) : Longueur de persistance ξ en fonction de Γ .

les résultats présentés pour deux séries d'expériences différentes, ce qui témoigne de la difficulté de reproduire les expériences dans les mêmes conditions et ce qui souligne l'importance de se fixer un protocole expérimental comme décrit dans la section précédente.

En ce qui concerne la dynamique collective des disques, la figure (2.10-b) montre un

instantané représentant les disques polaires coloriés selon le degré d'alignement des disques avec leurs voisins. En rouge les disques sont alignés et en bleu les disques sont anti-alignés. On observe des groupes de disques qui progressent de façon cohérente dans la même direction. L'alignement global des disques polaires dans le liquide est caractérisé par le paramètre d'ordre $\Psi(t) = \|\frac{1}{N} \sum_i \vec{v}_i\|$ où \vec{v}_i est la vitesse mesurée pour le disque i défini comme le rapport $\|\Delta r(t, t + \tau)\|/\tau$ pour $\tau \sim 50$. La distribution du paramètre d'ordre, que l'on représente sur la figure (2.10-a), varie fortement avec l'accélération. Cette dernière est très piquée autour de petites valeurs pour les plus grands Γ et passe vers des plus grandes valeurs aux plus faibles Γ . Ceci signifie que l'ordre global et la longueur de persistance individuelle des particules varient en fonction de la longueur de persistance. Ainsi, lorsque cette longueur augmente, l'ordre global augmente ; lorsqu'elle diminue, l'ordre diminue également. On observe aussi que les distributions sont plus larges aux faibles valeurs de Γ , ce qui traduit le fait que les mouvements collectifs sont très intermittents.

2.3.1 Caractéristiques des disques dans le cas de nos expériences

On a vu que l'accélération du vibreur modifie fortement les propriétés individuelles et collectives des disques. L'objectif de la thèse de Julien Deseigne, était de modéliser expérimentalement un marcheur persistant, puis d'en comprendre sa dynamique individuelle et ses propriétés collectives pour des fractions surfaciques relativement

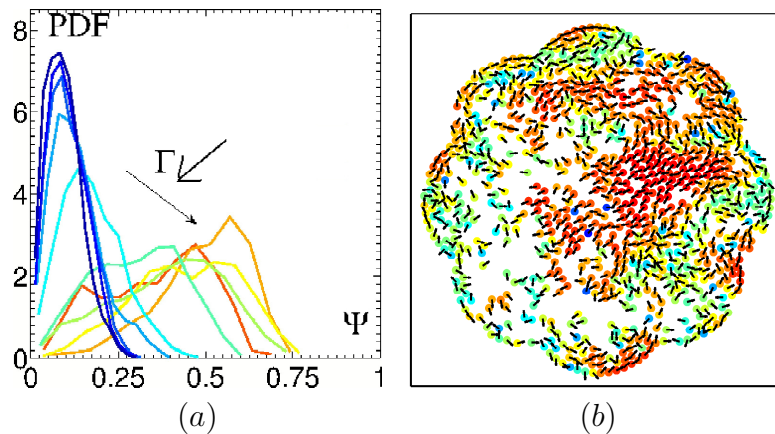


FIGURE 2.10 – **Ordre polaire.** Images extraites de la thèse de J.Deseigne (Réf. [19]). (a) : Distribution du paramètre d'ordre polaire. Le code couleur va du rouge au bleu pour des Γ allant de 2.7 à 3.7. (b) : Instantané montrant une phase de mouvement collectif de disques polaires vibrés, obtenus à $\Gamma = 2.7$, une particule rouge signifie qu'elle est bien alignée avec ses voisins. Une particule en bleu se déplace en sens opposé. Les flèches noires indiquent le sens de déplacement.

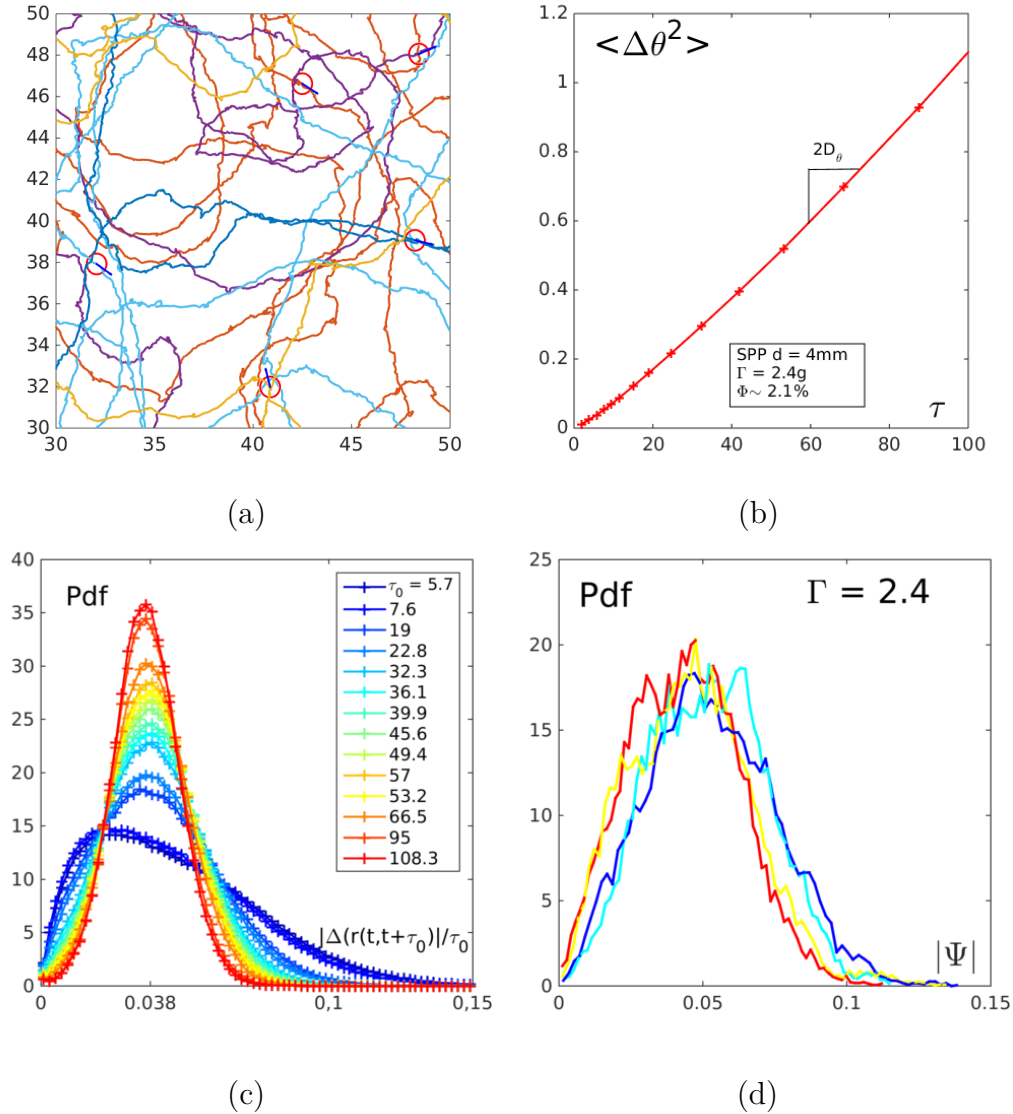


FIGURE 2.11 – **Mesures des comportements individuels et collectifs des disques polaires.** Résultats obtenus dans les conditions expérimentales de cette thèse. (a) : Trajectoires de quelques disques SPP dans une fenêtre carrée de taille de 20 diamètres Les flèches bleues indiquent la polarité des disques en rouge. (b) : Mesure de l'incrément quadratique moyen de l'angle de la polarité en fonction du temps (τ). On mesure un coefficient de diffusion $D_\theta = 0.0052\text{rad}^2/\tau_0$. (c) ; distribution des déplacements à différents τ_0 . La vitesse des disques vaut environ $0.0038 d.\tau_0^{-1}$. (d) : Distribution (Pdf) du paramètre d'ordre polaire global $|\Psi|$ pour $\Gamma = 2.4$ et $\Phi \in [0.45, 0.52, 0.56, 0.61]$ respectivement pour les courbes en bleu foncé, bleu clair, jaune et rouge.

faibles. Ainsi, il a très peu modifié la fraction surfacique et essentiellement varié l'amplitude de vibration Γ . L'objectif de cette thèse est très différent : nous souhaitons principalement étudier l'effet de la fraction surfacique, en particulier dans les régimes denses. Nous avons donc réalisé nos expériences à une accélération donnée ($\Gamma = 2.4$), ce qui a pour conséquence de fixer la longueur de persistance des disques.

Pour estimer cette longueur de persistance, nous avons fait une expérience avec 125 disques dans l'arène en forme de fleur avec des lobes de tailles irrégulières. Notre région d'intérêt est un cercle de 28 d comme présenté sur la photo de la figure (2.6-b). La fraction surfacique dans la ROI est $\Phi_{roi} = 2.1\%$. La fréquence de vibration pour nos expériences est 95 Hz. Dans le cas présent, la fréquence d'acquisition est 50 Hz. Nous employons la même stratégie que celle présentée dans la section précédente pour mesurer la longueur de persistance. L'échelle de temps est à nouveau $\tau_0 = 1/f_{vib}$. Sur la figure (2.11-b) nous représentons la dynamique de l'angle que fait le vecteur polarité \vec{n} dans le référentiel de l'image ($\langle \Delta\theta^2(\tau) \rangle$). La courbe est quasiment linéaire. On peut en extraire le coefficient directeur qui vaut $2D_\theta = 0.0105 rad^2/\tau_0$. Puis sur la figure (2.11-c), nous représentons la distribution $\|\Delta r(t, t+\tau)\|/\tau$. On remarque qu'à temps court la distribution est assez large : ceci résulte du fait que les disques ont un déplacement bruité. Puis lorsque le temps augmente, une distribution unimodale centrée autour d'une même valeur se développe. La position de ce pic nous donne la vitesse moyenne des disques $\langle v \rangle = 0.038 d.\tau_0^{-1}$. On en déduit alors une longueur de persistance $\xi = \frac{\langle v \rangle}{D_\theta} \sim 7 d$.

Mesure de l'ordre collectif

Julien Deseigne, avait fait le choix de prendre l'orientation de la vitesse pour mesurer l'ordre dans la phase de mouvement collectif car il pouvait appliquer la mesure de ce paramètre aux disques isotropes. Cet ordre peut aussi se mesurer en utilisant la direction de la polarité. Il a pu vérifier que ces deux mesures donnent le même résultat. Pour des raisons d'efficacité, nous mesurons l'ordre polaire en utilisant la direction de la polarité.

Sur la figure (2.11-d) on représente la distribution de l'ordre polaire pour trois expériences réalisées et exploitées lors de l'étude de la cristallisation des disques polaires pour $\Phi \in [0.43, 0.45, 0.52, 0.56]$ (voir chapitre 3). On note que l'ordre polaire est extrêmement faible dans le cas de nos expériences. La longueur de persistance des disques dans le nouveau système expérimental à $\Gamma = 2.4$ est proche de celle obtenue par Julien Deseigne à $\Gamma = 2.3$.

2.3.2 Conclusion sur le comportement des disques durs polaires

Dans cette partie nous avons rappelé les propriétés individuelles et collectives des disques polaires. Le disque polaire est un bon modèle expérimental de particule active. L'énergie est injectée à l'échelle individuelle, les disques se propulsent avec une certaine vitesse nominale, et en même temps ils dissipent de l'énergie *via* la friction avec le plateau vibrant et lors des collisions avec la vitre placée au-dessus du plateau vibrant. Ce dernier joue un double rôle : il est la source du bruit et la source de l'activité due au couplage entre la polarité du disque et le plateau vibrant. De plus, au niveau des collisions les disques peuvent s'aligner et engendrer un mouvement collectif dont l'intensité est contrôlable par l'accélération du vibreur. On retiendra que nos expériences se déroulent avec des disques dont le mouvement est moins persistant que dans le cas de celles réalisées par J. Deseigne. Il en résulte que des mouvements collectifs sont absents aux fractions suraciques étudiées par J. Deseigne.

2.4 Modélisation du disque dur actif

Lors de cette thèse nous avons eu recours à des simulations numériques de phases denses de disques durs actifs. Ainsi nous profitons du fait d'avoir en tête le comportement individuel du disque dur actif pour en rappeler sa modélisation, dont les simulations reproduisent très fidèlement les observations expérimentales. Nous commencerons par donner les équations introduites par Christoph Weber [94] que nous avons utilisées pour simuler l'expérience, puis nous passerons à leur forme adimensionnée qui correspond à la forme des équations utilisées pour les simulations du chapitre 4.

Outre les deux degrés de positions (\vec{r}), le disque polaire présente un troisième degré de liberté correspondant à l'angle ϕ (voir figure (2.12)) que fait le vecteur polarité dans la base (x, y) , $\vec{n} = (\cos(\delta), \sin(\delta))_{\vec{e}_x, \vec{e}_y}$. On a vu que \vec{n} et \vec{v} ne sont pas toujours alignés. On ne peut donc pas réduire \vec{n} à l'orientation de la vitesse. Trois équations ont été proposées par C. Weber pour modéliser la dynamique des disques.

$$\frac{d\vec{r}}{dt} = \vec{v}, \quad (2.1)$$

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = [\mu + \eta_{||}]\vec{n} + \eta_{\perp}\vec{n}_{\perp} - \beta\vec{v} + \text{collisions}_e \quad (2.2)$$

$$\frac{d\delta}{dt} = \xi \sin(\alpha) \text{sgn}(\cos \alpha) \quad (2.3)$$

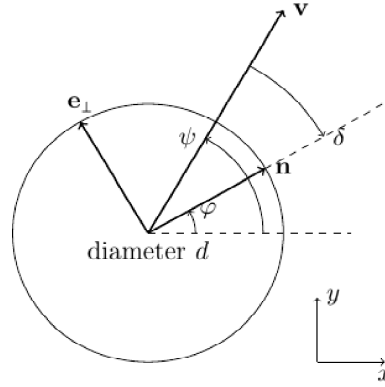


FIGURE 2.12 – **Schéma d'un disque dur polaire actif.** schéma extrait de la Réf. [42]. Le disque présente trois degrés de liberté : sa position \vec{r} dans le repère (\vec{e}_x, \vec{e}_y) et son orientation $\hat{\mathbf{n}}$, qui fait un angle δ avec l'axe \vec{e}_x ($\delta = \psi - \phi$). La vitesse du disque $\vec{v} = \dot{\vec{r}}$ fait un angle ψ avec \vec{e}_x .

- La première équation décrit la dynamique du centre de masse \vec{r} .
- La deuxième équation décrit la dynamique de \vec{v} . La dynamique dépend de la force de propulsion (active) d'intensité μ portée le long de \vec{n} et d'une force visqueuse $-\beta\vec{v}$ qui assure un équilibre dans le régime asymptotique. Les collisions entre les disques sont considérées inélastiques et paramétrées par ϵ le coefficient de restitution. Enfin les termes $\eta_{\parallel, \perp}$ correspondent à du bruit "actif" car ils agissent sur la force active de façon anisotrope. Ils permettent de tenir compte des périodes de déplacements au cours desquelles le disque avance par à coups. Ce sont des bruits blancs gaussiens caractérisés par $\langle \eta_{\parallel, \perp} \rangle = 0$ et $\langle \eta_{\parallel, \perp}(t)\eta_{\parallel, \perp}(t') \rangle = 2D_{\parallel, \perp}\delta(t - t')$.
- La troisième équation traduit l'évolution de Φ ou de manière équivalente de \vec{n} . On considère une dynamique sur-amortie qui tient compte du fait que \vec{n} tourne vers \vec{v} pour $\|\alpha\| < \pi/2$ et vers $-\vec{v}$ lorsque $\|\alpha\| > \pi/2$, \vec{n} .

Ces équations traduisent l'évolution des disques durs polaires vibrés. Elles présentent 6 paramètres ($\mu, \beta, \xi, D_{\parallel, \perp}, \epsilon$). Ces derniers ont été ajustés grâce aux données expérimentales des dynamiques individuelles et des collisions binaires [47, 46]. Les valeurs trouvées sont les suivantes : ($\mu = 2.5 \cdot 10^{-3}, \beta = 0.1, \xi = 0.09, D_{\parallel, \perp} \sim 10^{-6}, d = 1$) et $\epsilon = 0.7$. L'unité de temps correspond à l'inverse de la fréquence de vibration $1/f_{vib}$ et les longueurs sont exprimées en diamètres de disques.

La simulation de ces équations dans les conditions expérimentales (même fraction surfacique et mêmes conditions limites spatiales) reproduisent très fidèlement les comportements collectifs observés dans les expériences. En outre, simulées avec des conditions limites périodiques, elles ont confirmé la présence d'une véritable transition d'un état isotrope vers un ordre polaire du mouvement collectif des disques. Par la suite, au cours d'une analyse théorique de ces équations [47], celles-ci ont été

reformulées de la façon suivante. La partie déterministe des équations (2.3) et (2.2) a été ré-écrite en adimensionnant la vitesse telle qu'elle soit réajustée par la vitesse asymptotique $v_\infty = \mu/\beta$ et le temps par le rapport $\frac{d}{v_\infty}$.

$$\frac{d\vec{r}}{dt} = \vec{v}, \quad (2.4)$$

$$\tau_v \frac{d\vec{v}}{dt} = \hat{n} - \vec{v} + \text{collisions}_\epsilon, \quad (2.5)$$

$$\tau_n \frac{d\hat{n}}{dt} = (\hat{n} \times \hat{v}) \times \hat{n} \quad (2.6)$$

avec $\tau_v = \frac{\mu}{\beta^2 d}$ et $\tau_n = \frac{\mu}{\beta^2 \xi d}$ et $\hat{n} = \frac{\vec{n}}{\|\vec{n}\|}$, de même pour $\hat{v} = \frac{\vec{v}}{\|\vec{v}\|}$.

Enfin le bruit, purement rotationnel, agit simultanément sur l'orientation des deux vecteurs \hat{n} et \vec{v} . Le bruit a pour effet de les réorienter en même temps. Il n'a donc pas d'influence sur leur écart angulaire. Cette réécriture des équations permet un traitement analytique présenté dans l'article [47, 46].

D'après ces équations, nous voyons que trois paramètres contrôlent la dynamique des disques : τ_n, τ_v et D . A partir des temps nous construisons le rapport $\alpha = \frac{\tau_n}{\tau_v}$, qui contrôle la persistance de l'orientation de \vec{n} par rapport à celle de \vec{v} .

Ce sont ces équations que nous utiliserons lors des simulations réalisées dans le cadre du chapitre 4 de cette thèse. Avec les valeurs des coefficients obtenus par C. Weber, on trouve que τ_v et τ_n valent respectivement 0.25 et 0.277, soit $\alpha \sim 0.1$. C. Weber ayant montré que le coefficient de restitution de l'énergie ϵ n'impactait pas la dynamique, nous avons fixé $\epsilon = 1$.

La figure (2.13-a) illustre trois trajectoires de particules déterministes (à bruit nul $D = 0$), pour un même $\alpha = 0.5$. Les configurations initiales diffèrent par l'angle qui sépare \hat{n} et \vec{v} . On remarque que plus l'angle initial entre \vec{v} et \vec{n} est important, plus la durée de relaxation de la dynamique de la particule augmente.

La simulation de cette dynamique est particulière, en raison du couplage entre les deux vecteurs \vec{v} et \vec{n} . Le couple induit sur \hat{n} tend à courber les trajectoires des disques. Il est alors nécessaire de discrétiser l'échelle de temps le plus finement possible pour traiter la courbure de ces trajectoires.

On commence d'abord par discrétiser les équations :

$$\vec{r}_{i+1} = \vec{r}_i + f(\vec{v}_i), \quad (2.7)$$

$$\vec{v}_{i+1} = \vec{v}_i + g(\vec{v}_i, \vec{n}_i) + \text{bruit}, \quad (2.8)$$

$$\vec{n}_{i+1} = \vec{n}_i + h(\vec{v}_i, \vec{n}_i) + \text{bruit} \quad (2.9)$$

avec f , g et h trois fonctions qui se déduisent à partir des équations continues.

Au début d'une simulation, les vitesses et les orientations sont prises de façon aléatoire. Ensuite tous les disques avancent en ligne droite sur un temps δt fixé de manière arbitraire. Au bout de ce temps δt les coordonnées sont actualisées selon les équations déterministes. Si le bruit $D/\lambda \neq 0$, juste après avoir actualisé les coordonnées $(\vec{n}_{i+1}, \vec{v}_{i+1})$, on ajoute le même angle $\eta_i(t)$ aux deux vecteurs. Celui-ci suit une loi normale de moyenne nulle et de variance égale à $2D\delta t$.

Les collisions sont détectées et traitées selon la méthode d'*event-driven* : dès que deux trajectoires de disques se coupent aux mêmes instants, les vitesses des deux disques sont modifiées en supposant que l'on a des collisions élastiques et leur polarité est inchangée :

$$\vec{v}_1 + \vec{v}_2 = \vec{v}'_1 + \vec{v}'_2, \quad (2.10)$$

$$\vec{n}_i = \vec{n}'_i, i \in (1, 2). \quad (2.11)$$

La figure (2.13-b) montre deux disques qui arrivent avec une vitesse $\vec{v} = \hat{n}$ et une certaine orientation. Tout de suite après la collision, on observe que les trajectoires sont courbées du fait du couple qui s'exerce sur \hat{n} . Puis les trajectoires deviennent rectilignes ce qui signifie que les vitesses et les polarités des disques ont relaxé l'une vers l'autre. On note aussi l'effet d'une collision sur l'alignement entre les disques : l'angle entre les trajectoires des particules en sortie de la collision est plus faible qu'avant la collision.

2.4.1 Diagramme des phases à basses densités

Le comportement des disques durs actifs a été étudié numériquement et théoriquement à très basses densités par Khanh-Dang Nguyen Thu Lam, Michael Schindler et Olivier Dauchot (Réf.[47, 46]).

Le diagramme des phases est représenté sur la figure (2.14-b). Il a été obtenu à l'issue de simulations numériques de N disques actifs dont la dynamique est donnée par les équations (2.4– 2.6), réalisées en deux dimensions dans une boîte carrée de dimension $L \times L$, aux conditions bi-périodiques en espace, et pour une densité très diluée $\rho = \frac{N}{L^2} = 0.01$.

On observe deux phases dans le plan des deux paramètres de contrôle (α, D) : une phase homogène isotrope et une phase polaire. L'ordre polaire est mesuré à chaque pas de temps par la quantité $\Psi(t) = \frac{\|\sum_i \vec{v}_i\|}{N}$, puis sa valeur est moyennée à partir du moment où une simulation montre un régime stationnaire. La transition entre ces deux phases change de nature en fonction de la nature du bruit.

A bruit nul, on observe une transition très fortement discontinue entre une phase isotrope et une phase polaire, pour une valeur critique de $\alpha = \alpha^*$. L'ordre polaire

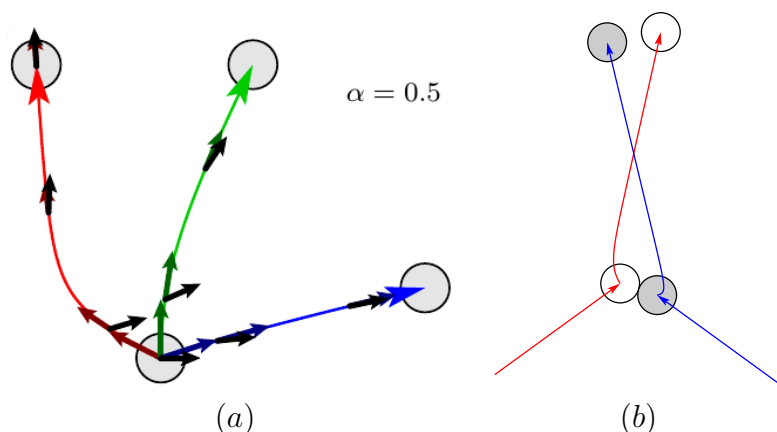


FIGURE 2.13 – **Exemples de simulations de trajectoires de disques.** (a) : Trois trajectoires différentes, sans bruit et pour trois configurations initiales différentes à $\alpha = 0.5$. La flèche noire indique la force de propulsion et les flèches en couleurs correspondent aux vitesses. (b) : Collision entre deux disques au cours d'une simulation qui permet d'aligner deux trajectoires. Les deux disques arrivent avec une vitesse alignée selon leur polarité. A l'issue de la collision, le couplage entre \vec{v} et \hat{n} a pour effet de courber les trajectoires des disques. A la sortie de la collision, l'écart entre les trajectoires est plus faible qu'à l'entrée.

vaut $\langle \Psi(t) \rangle \sim 1/\sqrt{N}$ dans la phase isotrope et est toujours strictement égal à 1 pour $\alpha > \alpha^*$. Enfin, il a été observé que pour n'importe quelle valeur de α , même lorsque $\alpha < \alpha^*$, un état initial avec un ordre polaire proche de 1 ($\langle \Psi \rangle \simeq 1$) converge tout le temps vers $\langle \Psi \rangle = 1$.

A bruit positif, le diagramme des phases est le suivant : au-delà d'une très forte valeur de bruit, la phase homogène est stable, le système n'entre jamais dans une phase polaire. Pour des valeurs de bruit plus faibles, pour $\alpha < \alpha_c$ fixé, on constate une transition discontinue, marquée par de la coexistence de phase à la transition et une hystérésis dans la courbe du paramètre d'ordre en fonction du bruit (voir figure (2.14-b) et (2.14-c)). Pour $\alpha > \alpha_c$ fixé, le paramètre d'ordre varie continûment, induisant une transition continue entre les deux phases.

Enfin, d'après la figure (2.14-b) on observe que la phase polaire est limitée à un certain intervalle de α . A bruit fixé et lorsque l'on augmente α , on observe une transition continue de la phase polaire vers la phase isotrope.

Notons que la frontière entre les deux phases avait été prédite exactement théoriquement par ces trois auteurs. En effet, ils ont dérivé une équation d'évolution paramètre d'ordre à partir d'une théorie cinétique à la Boltzmann. La théorie concerne des diffusions binaires de particules actives à un taux λ tel que $\lambda^{-1} \gg \tau_n, \tau_v$. Ainsi les particules actives ont le temps de converger vers leur vitesse nominale entre chaque événement de diffusion (Réf.[47]). Un événement de diffusion est composé

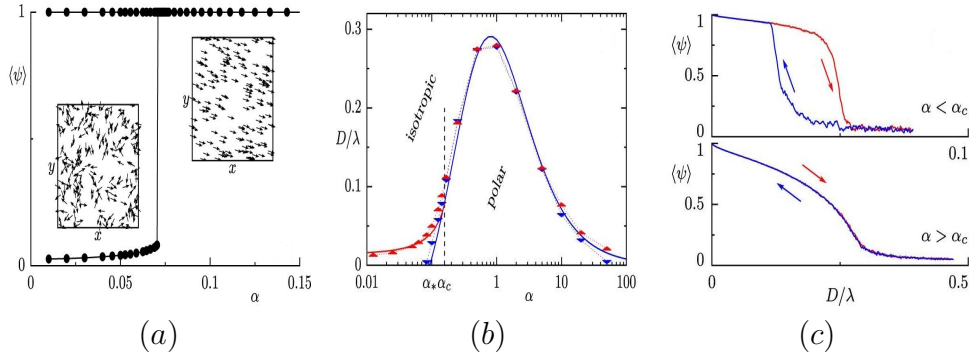


FIGURE 2.14 – **Résultats simulations numériques.** Figures extraites de la Réf. [47]. (a) : Paramètre d'ordre polaire $\langle \Psi \rangle$ en fonction de α à bruit nul. On constate une transition discontinue entre une phase homogène isotrope vers une phase polaire à une valeur critique de α_c . Les conditions initiales sont importantes, pour tout $\alpha > 0$, un système avec un ordre polaire proche de 1 à l'instant initial converge systématiquement vers 1. (b) : Diagramme des phases dans l'espace des paramètres (α, D) obtenu pour une densité $\rho = 0.01$. la ligne solide est une ligne prédite par le calcul de champ moyen. La ligne pointillée bleue est celle obtenue par les simulations numériques lorsque l'on diminue le bruit de façon quasi-statique à α fixé, la ligne bleue correspond à une augmentation quasi-statique du bruit. (c) : Évolution du paramètre d'ordre selon la valeur de α . La transition est continue pour $\alpha > \alpha_c$ et discontinue pour $\alpha < \alpha_c$.

d'une ou de multiples collisions entre deux particules. Chaque collision est élastique et conserve donc le moment. Mais la dynamique des particules est telle que les particules récupèrent leur impulsion à l'issue d'un événement de diffusion. Ainsi, les événements de diffusions binaires ne conservent pas le moment et mènent à une déstabilisation de la phase homogène vers la phase polaire.

L'équation de champ moyen du paramètre d'ordre $\Psi(t)$ est donnée par

$$\frac{d\Psi}{dt} = (\mu - D/\lambda)\Psi - \xi\Psi^3, \quad (2.12)$$

où les coefficients sont donnés par les équations $\mu = \langle \vec{P} \cdot \delta \vec{P} \rangle_0$, $\xi = \langle (1/2 - \cos \Delta) \vec{P} \cdot \delta \vec{P} \rangle_0$. La moyenne d'une quantité f , est donnée par $\langle f \rangle_0 = \frac{1}{4} \int_{-1}^1 db \int_0^\pi d\Delta |\sin \frac{\Delta}{2}| f(b, \Delta)$. Ces équations font intervenir b , le paramètre d'impact, Δ , l'angle en entrée entre la direction des vitesses des particules et le terme $\vec{P} \cdot \delta \vec{P}$. Ce dernier représente la projection de la somme du moment des deux particules au début de l'événement de diffusion (\vec{P}), sur la différence de l'impulsion entre le début et la fin de l'événement de diffusion ($\delta \vec{P}$). μ donne une intuition très claire de l'importance que joue la non conservation du moment : la phase homogène isotrope correspond à $\mu < D/\lambda$, la transition vers la phase polaire survient pour $\mu = D/\lambda$ et pour $\mu > D/\lambda$, la phase isotrope est instable et les collisions sont à

même de créer du moment.

2.4.2 Conclusion

Dans ce premier chapitre nous avons présenté le système expérimental utilisé au cours de cette thèse, puis nous avons détaillé l'ensemble de la chaîne d'acquisition.

Nous avons ensuite présenté le comportement individuel et collectif des disques durs actifs observé par Julien Deseigne au cours de sa thèse. Aux accélérations auxquelles il avait pu travailler ($[2.7 - 3.7]g$), les disques se propulsent dans la direction de leur polarité. Les disques qui se collisionnent peuvent générer un alignement entre les directions des vitesses des disques. Ceci a pour conséquence qu'à fraction surfacique $\Phi \sim 0.40$, les disques développent une phase de mouvement collectif. La persistance du mouvement des disques varie avec l'accélération du vibreur en fonction de laquelle l'ordre polaire est plus ou moins important.

Nous avons à nouveau caractérisé le disque polaire individuellement et collectivement pour l'accélération $\Gamma = 2.4$, valeur à laquelle nous avons fait nos expériences. Le montage expérimental a été modifié. Nous observons qu'à cette accélération les disques polaires avancent bien de manière superdiffusive, mais que leur persistance est modérée. L'ordre polaire est quasiment absent aux fractions surfaciques $\Phi < 0.55$.

Enfin nous avons présenté les équations qui modélisent la dynamique individuelle d'un disque dur actif, et dont les simulations reproduisent très fidèlement les observations expérimentales. Nous avons finalement rappelé le diagramme des phases tel qu'il a été prédit par une approche de type théorie cinétique pour des régimes très dilués.

Chapitre 3

La transition de cristallisation de disques durs SPP

3.1 Introduction

Le plus souvent, l'ordre de la phase condensée cristalline résulte d'un potentiel d'attraction entre les atomes. L'ordre se met en place dès que l'énergie cinétique des atomes, c'est-à-dire leur température, devient plus faible que l'énergie d'attraction entre les atomes. Ainsi, usuellement en dimension 3, si un liquide d'équilibre est refroidi suffisamment lentement, la cristallisation commence à apparaître à une certaine température. La cristallisation se produit dès lors que la différence d'énergie libre entre la phase liquide et la phase solide est favorable à la nucléation de régions solides, de tailles supérieures à une taille critique, dans la phase liquide. Ces régions croissent, fusionnent, et finissent par envahir totalement la phase liquide pour former un solide cristallin. Durant tout ce processus de cristallisation, on observe un système très fortement hétérogène en densité et présentant une coexistence de phase. La cristallisation est donc une transition de phase thermodynamique discontinue du premier ordre (figure 3.1-a et 3.1-b) (Réf. [71, 29]).

Par ailleurs, le passage de l'état liquide à l'état solide cristallin se manifeste à la fois par un changement structurel et un changement dans la dynamique collective des atomes. En effet, le liquide est un état désordonné de la matière, dans lequel les atomes se situent aléatoirement dans l'espace et diffusent librement : le liquide coule. Le cristal, quant à lui, est une phase solide présentant de l'ordre translationnel : un motif d'atomes se répète périodiquement à longue distance. Cette structure lui confère sa rigidité élastique. Ceci implique qu'il ne puisse couler sous l'effet de petites déformations. Dans le cristal, les atomes vibrent du fait de l'agitation thermique. La structure n'est donc pas parfaitement périodique à tout instant et ne se définit que statistiquement dans le temps.

En physique des liquides, le spectre de l'opérateur densité permet de distinguer un liquide d'un solide. L'étude de l'ordre structural se fait via la mesure du spectre de Fourier du champ de densité. L'ordre translationnel du cristal se manifeste par la présence de pics de Bragg (figure 3.1-c) dans le spectre de Fourier localisés à des vecteurs d'onde particuliers, correspondants aux distances auxquelles s'arrangent les atomes dans le cristal. La dynamique (figure 3.1-c) se comprend grâce à la fonction d'auto-corrélation temporelle du champ de densité. Un liquide relaxe toujours vers 0, ce qui signifie que le système décorrèle sa structure par diffusion des atomes. Par contre, pour un cristal, elle montre une relaxation rapide suivie d'un plateau : les atomes vibrent et restent confinés dans une cage formée par leurs voisins au cours du temps. (Réf.[23])

Tout ce qui vient d'être énoncé est vrai en dimension 3, mais s'avère être quelque peu différent en dimension 2, la dimension d'étude de notre système expérimental. En effet, un cristal à deux dimensions ne présente qu'un quasi-ordre translationnel à longue portée, mais comporte un ordre orientationnel à longue portée. Le cristal à $2d$ est moins ordonné que celui en $3d$ et en diminuant la température, le passage de l'état liquide à solide est modifié (voir figure 3.1-c). Le liquide isotrope développe d'abord un quasi-ordre orientationnel à longue portée, et ne possède un ordre translationnel qu'à courte distance. Le liquide est alors qualifié de liquide hexatique. En diminuant encore la température, ce dernier développe un quasi-ordre translationnel et un ordre orientationnel à longue distance : c'est la phase cristalline à $2d$. La transition discontinue du premier ordre observée en dimension 3, est remplacée par une transition en deux temps comme le prédit la théorie de Kosterlitz-Thouless-Halperin-Nelson-Young (KTHNY) (Réf. [44, 35, 61, 84]). Ce scénario a très largement été débattu, en particulier sur la nature continue/discontinue des transitions entre chaque phase. Nous présenterons cette théorie dans le chapitre suivant.

La spécificité de cette thèse est de s'intéresser au cas de disques durs. L'énergie potentielle en jeu entre les disques est soit nulle, soit infinie. Les disques ne s'attirent pas et ne peuvent s'interpénétrer. Il n'y a donc pas d'échelle d'énergie ; changer la température ne modifie pas la physique. On pourrait alors se demander si des disques durs peuvent former un cristal ordonné. La réponse est oui, et ce problème a déjà été élucidé.

A l'équilibre thermodynamique, des disques durs cristallisent. Qu'en est-il des disques durs isotropes (ISO), et des disques polaires actifs (SPP) ? La cristallisation des disques durs isotropes n'est pas garantie, en raison du fait que le système expérimental est maintenu hors d'équilibre. Puisqu'individuellement, un disque dur isotrope montre un mouvement Brownien comme ceux des disques durs d'équilibre, on pourrait penser que les disques durs isotropes peuvent cristalliser. Par contre, le disque polaire soumis en continu à une force active développe une marche aléatoire persistante. Il est par nature profondément hors d'équilibre. Les questions que nous posons sont les suivantes : si chaque particule d'un solide est dotée d'un moteur

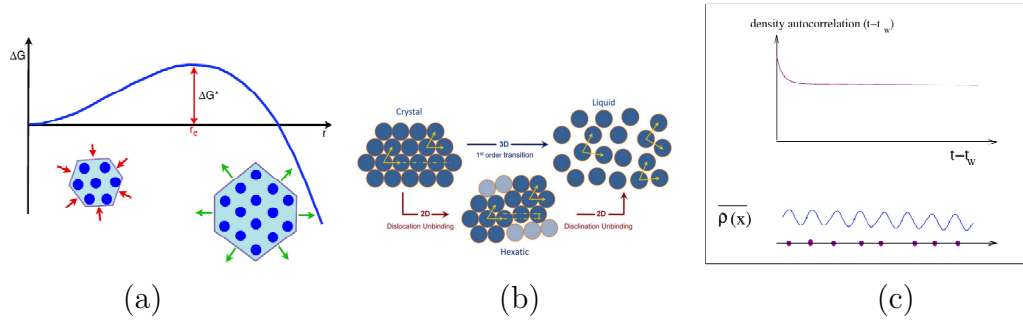


FIGURE 3.1 – Principe de la cristallisation. Les figures (a) et (b) sont extraites de la réf. [29] et (c) est extraite de la réf. [23]. (a) : Résultat donné par la théorie classique de nucléation. Energie libre (ΔG) d'une cristallite en fonction de son rayon r . Pour former un noyau solide stable d'un certain rayon dans la phase liquide, l'énergie libre doit franchir une barrière à $r = r_c$. Les noyaux de rayons sous critique ($r < r_c$) ne tiennent pas et rétrécissent, les noyaux de rayons $r > r_c$ s'expandent et abaissent leur énergie libre. (b) : Comparaison de la transition liquide-cristal en $2d$ et en $3d$. En dimension 3 le cristal suit une transition du premier ordre et tombe directement dans la phase liquide lors de sa fonte. En dimension 2 le cristal passe d'abord par une phase hexatique dans lequel le liquide présente un ordre orientationnel, puis devient un liquide isotrope sans ordre particulier. (c)-haut : Évolution de l'auto-corrélation du champ de densité en fonction du temps pour un solide cristallin. En raison de la vibration du cristal, on observe une relaxation rapide de l'opérateur densité, suivie d'un plateau qui marque le piégeage des particules dans leur cage. (c)-bas : Moyenne temporelle du champ de densité en fonction de l'espace. On observe une modulation spatiale de la densité moyenne. Cette modulation est la signature d'une structure ordonnée cristalline.

interne, ce solide peut-il encore se former ? Si oui, est-il stable ? Est-il de la même nature qu'un solide d'équilibre ? Comment la compétition entre le travail généré par les disques durs actifs et l'entropie, qui impose à des disques durs d'équilibre de former un cristal, se manifeste-t-elle ? *A priori*, il est assez difficile d'inférer le type de transition que l'on pourrait obtenir pour le cas des SPP. En effet, le modèle même de particule SPP est très différent de celui des particules ISO et de celui de disques durs d'équilibre. A l'équilibre, le seul paramètre pertinent est la fraction surfacique Φ . Dans le cadre de notre expérience, si l'on travaille avec les disques ISO, quelques paramètres supplémentaires sont à considérer, tels que le bruit mécanique (différent a priori du bruit thermique) et le taux de dissipation. En ce qui concerne les disques SPP, en sus des paramètres cités ci-dessus, on s'attend à observer un rôle de la persistance et de l'alignement. Nous avons fait le choix de travailler à une accélération du vibreur donnée et fixée à 2.4 g et 95 Hz. Les interactions entre les disques et le plateau sont fixées. La fraction surfacique sera donc le seul paramètre de contrôle de nos expériences.

Dans ce chapitre nous commencerons par présenter le rôle que joue l'entropie dans une transition du type désordre-ordre pour des objets durs, puis nous présenterons succinctement les résultats d'équilibre de la transition de disques durs obtenus par E. Bernard et W. Krauth (Réf. [6]). Dans une seconde partie, nous commencerons par discuter qualitativement des changements qui s'opèrent dans les systèmes de disques durs ISO et SPP lorsque nous augmentons la fraction surfacique. Puis nous passerons à une étude plus quantitative. Nous présenterons d'abord nos résultats expérimentaux liés à des quantités statiques pour déterminer les ordres translationnel et orientationnel en fonction de la fraction surfacique. Nous nous intéresserons ensuite aux propriétés dynamiques pour observer comment relaxe l'ensemble des disques en fonction de Φ . Nous serons alors en mesure de conclure sur les différences et les similitudes dans la cristallisation entre les disques durs isotropes et actifs. Enfin, nous nous intéresserons aux caractéristiques de la phase haute densité des disques durs actifs.

3.2 La transition de cristallisation d'équilibre des disques durs

3.2.1 Une transition gouvernée par l'entropie

Un système d'équilibre qui échange de l'énergie avec son environnement à la température T a une énergie libre $F = E - TS$. Le système évolue toujours vers un état d'énergie libre minimale. Ceci est possible à température constante, soit en abaissant l'énergie interne, soit en augmentant l'entropie. L'entropie s'écrit usuellement comme $S = k_B \log(\Omega)$, avec Ω le nombre de configurations accessibles. Une transition de phase entre un état désordonné et un état ordonné, signifie en général que l'entropie diminue car le nombre d'états ordonnés est plus faible. Pour qu'une transition puisse se réaliser, cette perte d'entropie doit être compensée par une diminution de l'énergie interne. Or, pour des objets durs, et en particulier des disques durs, l'énergie interne se réduit à la partie cinétique des disques. L'énergie libre s'écrit $F = E - TS = 3/2k_B T - TS = T(3/2k_B - S)$. A une constante près, elle est proportionnelle à la partie entropique. Pour des particules dures, modifier la température ne modifie pas la physique, c'est le volume exclu qui détermine l'interaction entre les objets. Dans ce problème, le volume joue le rôle de l'énergie et l'inverse de la pression P^{-1} celui de la température. Le contrôle du passage du liquide à un cristal se fait alors via la fraction surfacique.

A présent, on peut se demander comment le système peut passer d'un état désordonné à un état ordonné, alors que le système doit accroître son entropie. Cette question a été résolue par Lars Onsager (Réf.[64, 27]). Il a étudié la faisabilité d'observer une transition de phase avec des bâtonnets durs en dimension 3, lorsque l'on

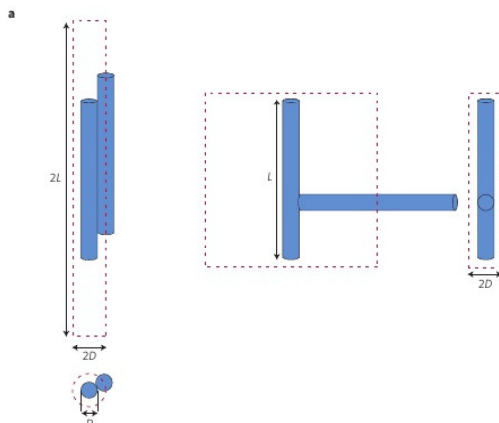


FIGURE 3.2 – **Forces entropiques.** Extrait de [28]. Bâtonnets cylindrique de diamètre D et de longueur L , tel que $L \gg D$. (a) : gauche. Configuration où deux bâtonnets sont placés en contact parallèlement, le volume exclu est représenté par le rectangle en pointillé et est de l'ordre $2\pi LD^2$. droite : Configuration où deux bâtonnets sont placés perpendiculairement l'un par à l'autre et au contact. Le volume exclu est de l'ordre $2L^2D$

augmente la densité de bâtonnets. Il trouve une transition entre un état isotrope et un état nématique, présentant un ordre orientationnel (voir figure (3.2)). Considérant des bâtonnets de longueur L et de largeur D telles que $L \gg D$, l'idée du calcul est le suivant : l'entropie, qui gouverne la transition, se scinde en une partie liée aux degrés de translations et une autre qui prend en compte les degrés d'orientations. A la transition entre l'état isotrope et l'état nématique, l'entropie orientationnelle décroît, mais dans le même temps l'entropie translationnelle augmente très fortement, favorisant l'émergence d'un ordre orientationnel macroscopique. Ainsi l'apparition d'ordre ne s'accompagne pas nécessairement d'une diminution de l'entropie totale. Dans le cas présent le volume accessible/libre pour les bâtonnets est plus important dans l'état nématique que dans l'état isotrope. Cette maximisation a pour conséquence de diminuer le nombre de configurations d'orientations et d'augmenter significativement le nombre de configurations accessibles en translation.

La transition de cristallisation des disques durs a la même origine que celle décrite pour des bâtonnets en dimension 3. C'est le volume accessible par disque qui gouverne la transition et induit la formation d'un état macroscopique ordonné. En augmentant la fraction surfacique, on observe une transition fluide(liquide)-cristal vers $\Phi \sim 0.72$. L'entropie globale du système se décompose en deux : une partie configurationnelle et une partie vibrationnelle. Le système tend vers une configuration présentant un ordre macroscopique dans lequel les disques forment un réseau hexagonal et où le volume accessible par particule est maximal. Le système est homogène et les disques vibrent dans leur cage constituée par leurs voisins. La réduction de l'entropie configurationnelle est compensée par l'augmentation de l'entropie

vibrationnelle (Réf.[29]).

3.2.2 Résultats numériques récents

Le débat sur la nature de la transition de cristallisation à $2d$ a longtemps persisté, mais a été conclu récemment, au moins en ce qui concerne la physique des disques durs. En 2011, Etienne Bernard et Werner Krauth ont réalisé des simulations numériques de disques durs pour étudier la transition thermodynamique liquide-cristal (Réf.[6]). Ils se sont concentrés sur la statique de ce problème et ont développé un algorithme original dérivé de Monte-Carlo. Cet algorithme porte le nom d'*event-chain* Monte-Carlo. Il leur a permis de simuler en un temps raisonnable quelques millions de disques durs, ce qui leur assure une bonne résolution en densité. Ils ont mesuré l'équation d'état $\beta P(2\sigma)^2$ en fonction de $(v)/(2\sigma)^2$, avec β l'inverse de la température, P la pression, σ le diamètre des disques, et v le volume par particule. Puis ils ont caractérisé la décroissance des deux fonctions de corrélations spatiales $g_2(r)$ et $g_6(r)$ leur permettant de caractériser l'ordre positionnel et translationnel en fonction de la densité. Ainsi, ils ont d'une part mis en évidence la phase hexatique située entre la phase liquide et la phase solide, et d'autre part, ils ont trouvé une transition du premier ordre entre les phases liquide et hexatique et une transition continue du 2^{nd} ordre entre les phases hexatique et cristalline.

A titre d'illustration, sur la figure (3.3-i3) les auteurs de l'article [6] observent une boucle dans la courbe de l'équation d'état à la transition liquide/hexatique. Cette boucle s'interprète comme une transition du premier ordre. Ceci signifie la coexistence de régions liquides moins denses avec des régions hexatique plus denses. Par ailleurs, cette coexistence de phase s'observe directement sur une image instantanée d'une configuration (figure 3.3-i2) où l'on observe des régions denses hexatiques qui coexistent avec des régions moins denses sans corrélations d'orientations particulières. Depuis, d'autres simulations basées sur d'autres algorithmes ont observé la même physique (Réf.[24]).

3.3 Protocole et vue qualitative du système en fonction de Φ

Commençons par décrire le protocole expérimental que nous nous sommes fixé. Nous montrerons ensuite quelques instantanés du système afin de se faire une idée de la physique qui se développe dans les phases denses de disques durs actifs.

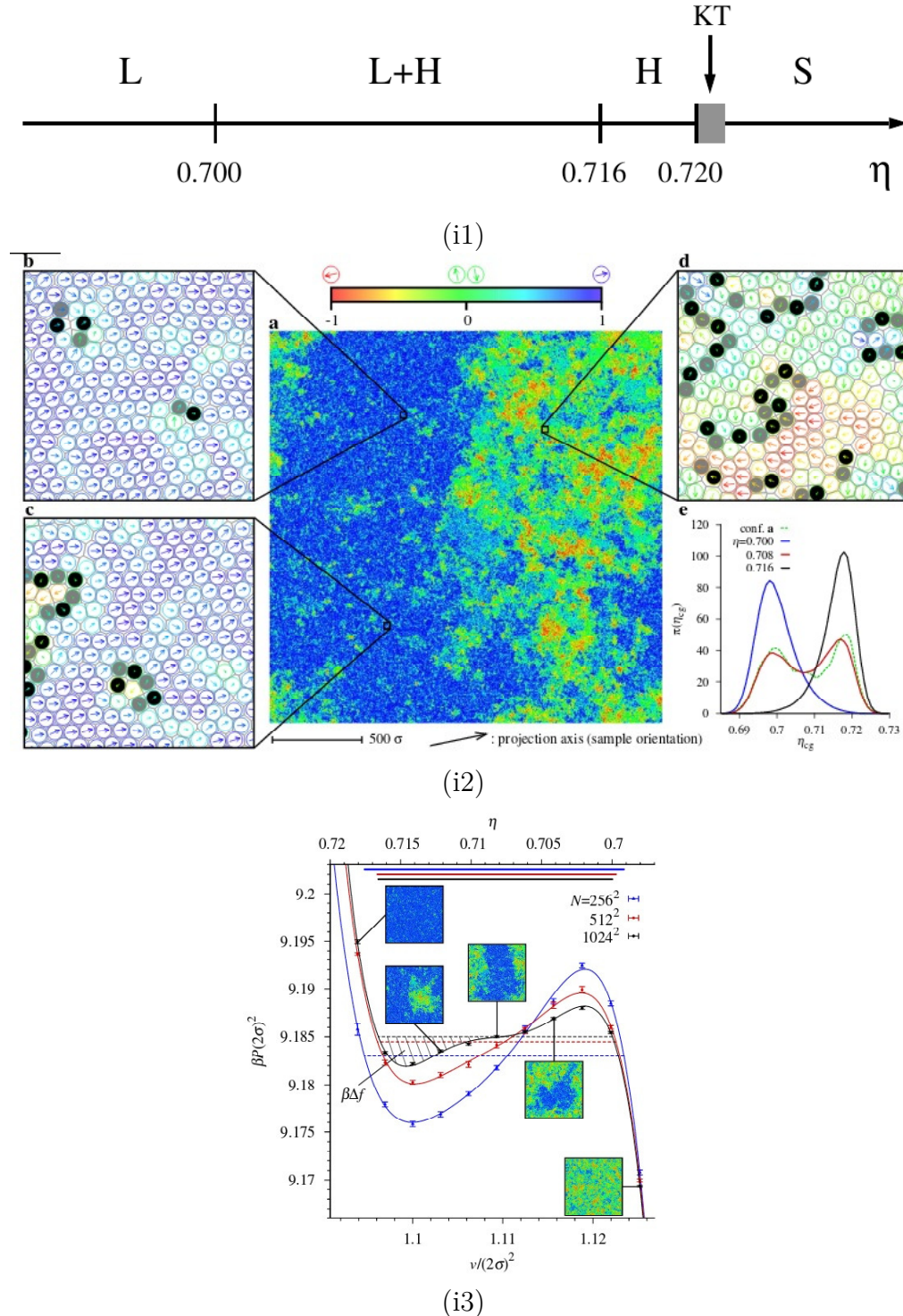


FIGURE 3.3 – **Transition liquide-cristal des disques durs.** Extrait de [6](i1) : Diagramme des phases des disques durs d'équilibre. η est la fraction surfacique. L = Liquide, H = Hexatique, S = Solide, KT = Kosterlitz- et Thouless. (i2) : Instantané de la simulation numérique de disques durs à la fraction surfacique $\eta = 0.708$. L'échelle de couleur est fonction de l'argument du champ local Ψ_6 . Les figures **b,c,d** sont des zooms au niveau de trois régions différentes de la carte **a**. **e** distributions de la densité locale η . On observe une densité bimodale avec deux pics centrés autour de $\eta = 0.7000$ et $\eta = 0.716$. (i3) : Équation d'état $P(v)$ pour différentes tailles de systèmes. Les branches à $N = 512^2$ et $N = 1024^2$ se superposent dans les phases pures. La limite thermodynamique est atteinte pour ces tailles de systèmes. La construction de Maxwell montre une coexistence de phase.

3.3.1 Protocole expérimental

Les expériences de cristallisation ont été faites dans les mêmes conditions pour les deux types de disques. L'arène utilisée est celle en forme de fleur, décrite dans le premier chapitre, la vibration est sinusoïdale de fréquence $f = 95$ Hz et d'accélération $\Gamma = 2.4$. Les acquisitions ont été faites à la fréquence de 25 Hz, pendant 10 minutes.

Pour étudier la cristallisation, qui se situe autour de $\Phi \sim 0.71$ à l'équilibre, nous partons d'une fraction surfacique d'environ 40% et nous montons progressivement jusqu'à atteindre $\Phi \sim 84\%$. Au-delà de cette fraction surfacique, l'insertion des disques dans l'arène devient très difficile. Pour rappel, la fraction surfacique théorique la plus dense que l'on puisse atteindre avec des disques de même taille est proche de 91%.

Au début de chaque expérience, à Φ donné, les disques sont rassemblés au centre du plateau. Nous laissons ensuite les disques s'homogénéiser à la surface du plateau pendant 10 minutes. Il n'y a donc pas de mémoires, en terme de configurations, entre les différents Φ étudiés.

Pour les deux types de disques, nous avons réalisé deux ensembles d'expériences, de sorte qu'il y ait un chevauchement en Φ .

Enfin, notons que pour l'ensemble des résultats présentés, les distances sont adimensionnées en diamètre de disques, et la base de temps est celle de l'acquisition.

Les tableaux 3.1 résument les caractéristiques des expériences que nous exploitons pour la présentation des résultats de cette partie. Les valeurs des fractions surfaciques sont indiquées dans un code couleur utilisé pour la plupart des figures présentées pour l'étude de la statique et de la dynamique du système. Enfin, précisons que la fraction surfacique est définie comme :

$$\Phi = \left\langle \frac{\pi d^2}{4A_v} \right\rangle_p, \quad (3.1)$$

avec d le diamètre des particules, A_v l'aire de la cellule de Voronoï d'une particule et $\langle \dots \rangle_p$ correspond à une moyenne sur l'ensemble des particules dans la ROI.

3.3.2 Quelques instantanés du système en fonction de la fraction surfacique

Nous commençons par montrer trois instantanés sur la figure 3.4 pour les disques durs ISO (en bas) et SPP (en haut) pour $\Phi \in [\sim 0.63, \sim 0.71, \sim 0.80]$.

Exp. SPP	$d = 4 \text{ mm}$									
N		1587	1890	2076	2264	2427	2620	2787	2998	3079
couleur graphe		Φ_1	Φ_2	Φ_3	Φ_4	Φ_5	Φ_6	Φ_7	Φ_8	Φ_9
valeurs Φ		0.45	0.52	0.57	0.61	0.65	0.71	0.75	0.81	0.84
Exp. ISO	$d = 4 \text{ mm}$									
N		1442	1541	1641	1741	1840	1942	2042	2141	2242
couleur graphe		Φ_1	Φ_2	Φ_3	Φ_4	Φ_5	Φ_6	Φ_7	Φ_8	Φ_9
valeurs Φ		0.41	0.43	0.45	0.48	0.50	0.53	0.56	0.58	0.61
Exp. ISO	$d = 4 \text{ mm}$									
N	2341	2441	2541	2642	2741	2842	2891	2941	2991	3091
couleur graphe	Φ_{10}	Φ_{11}	Φ_{12}	Φ_{13}	Φ_{14}	Φ_{15}	Φ_{16}	Φ_{17}	Φ_{18}	Φ_{19}
Φ	0.63	0.66	0.68	0.71	0.74	0.77	0.78	0.79	0.80	0.83

TABLE 3.1 – **Caractéristiques des expériences pour les disques SPP et ISO.** Un temps d'équilibration t_{eq} a été fixé à 10 minutes pour l'ensemble des expériences. De même pour le temps d'acquisition t_a . La fréquence d'acquisition est fixée à 25 Hz. Le tableau du **haut** concerne les expériences faites avec des SPP, les tableaux du **milieu** et du **bas** concernent les expériences faites avec des ISO. La couleur de la fraction surfacique Φ correspond au code couleur utilisé pour les graphes de l'étude sur la structure et la dynamique.

- A $\Phi = 0.63$, les ISO et les SPP sont dans un état liquide et nous n'observons pas de structure particulière. On peut observer que le liquide d'ISO est plus homogène que celui des SPP, qui présente quelques hétérogénéités spatiales.
- A $\Phi = 0.71$, les ISO présentent encore davantage d'homogénéité dans leur structure que les SPP. Pour les ISO, on observe une structure assez hexagonale sur l'ensemble du plateau, avec néanmoins quelques fluctuations de densités. Les SPP semblent se séparer en des régions denses et bien ordonnées d'une part, et en des régions désordonnées moins denses d'autre part.
- A $\Phi = 0.80$, les ISO forment un cristal dense. On identifie très bien la présence de trois lacunes et celle d'une ligne de défauts, visible en haut à droite de la photo. Concernant les SPP, le système reste très hétérogène et l'état condensé a pris de l'ampleur.

La succession de ces photos laisse supposer que les disques ISO et les disques SPP cristallisent selon deux voies totalement différentes. Les ISO le font de façon homogène. En revanche, les SPP, le feraient en développant de la coexistence entre des disques condensés et des disques dans un état liquide, suggérant une transition du premier ordre comme en dimension 3. Les questions auxquelles nous tenterons de

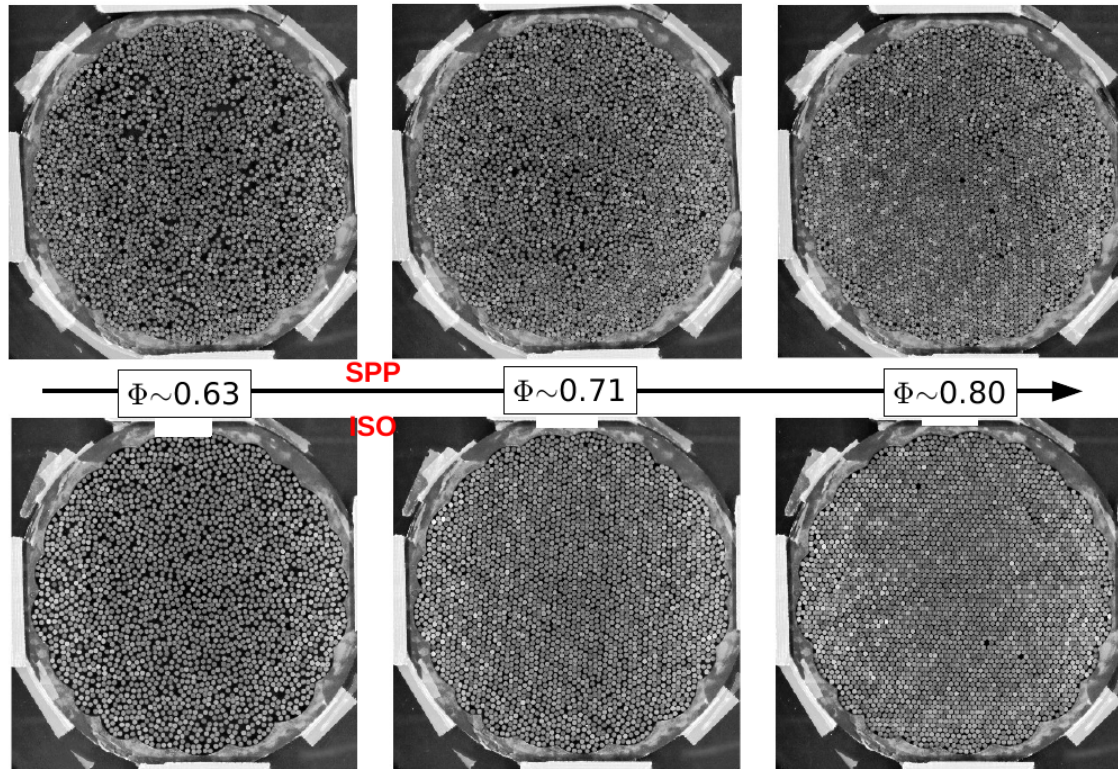


FIGURE 3.4 – Instantanés à différentes fractions surfaciques.
 $\Phi \in [\sim 0.63, \sim 0.71, \sim 0.80]$ pour les SPP en haut et pour les ISO en bas

répondre tout au long de cette partie sont les suivantes :

Observe-t-on une séparation de phase pour les disques SPP, entre un état désordonné liquide et un état ordonné solide ?

Si oui, y-a-t-il un phénomène de *coarsening* à mesure que l'on augmente la fraction surfacique ?

Comment caractériser la rhéologie du système de SPP à $\Phi = 0.80$?

Le système forme-t-il un solide, ou coule-t-il comme un liquide ?

Pour tenter de répondre à ces quatre questions, nous commencerons par nous intéresser à la structure du système, puis nous passerons à l'étude de sa dynamique.

3.4 Structure de disques durs vibrés isotropes et polaires

Comme il est d'usage en dimension 2, nous étudierons les deux ordres qui se développent en phase dense, à savoir l'ordre positionnel et l'ordre orientationnel.

3.4.1 Ordre positionnel

Cette expérience nous permet à tout instant de relever les positions des disques directement dans l'espace réel. La plupart des mesures que l'on effectuera se feront donc dans cet espace.

Pour déterminer l'ordre positionnel en fonction de la fraction surfacique, nous étudions la fonction de corrélation de paires que l'on note $g_2(r)$. Cette fonction est à la base de toute étude statique, pour mettre en évidence une structure soit désordonnée, soit ordonnée cristalline. En outre, elle permet d'inférer l'ensemble des propriétés thermodynamiques d'équilibre du système, dans le cas où les particules interagissent uniquement par paires.

Définition.

En toute généralité, pour un système à l'équilibre constitué d'un nombre N de particules interagissant ensemble via un potentiel V , nous définissons l'hamiltonien (Réf. [92])

$$H = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2m} + V(\mathbf{r}^N) \quad (3.2)$$

La probabilité de trouver n particules dans un volume $d\mathbf{r}^n$ autour des positions $(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n)$ est donnée par :

$$\rho_N^{(n)}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n) = \frac{N!}{(N-n)!} \frac{\int e^{-\beta V(\mathbf{r}^N)} d\mathbf{r}^{N-n}}{Z_N(V, T)} \quad (3.3)$$

avec $Z_N(V, T) = \int e^{-\beta V(\mathbf{r}^N)} d\mathbf{r}^N$ la fonction de partition du système.

La normalisation de ρ est telle que pour $n = 1$ et pour $n = 2$, on ait respectivement :

$$\int \rho_N^{(1)}(\mathbf{r}_1) d\mathbf{r}_1 = N, \quad \int \rho_N^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 = N(N-1). \quad (3.4)$$

On définit la fonction de distribution de paires comme :

$$g_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{\rho_N^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)}{\rho_N^{(1)}(\mathbf{r}_1) \rho_N^{(1)}(\mathbf{r}_2)} \quad (3.5)$$

où $\rho_N^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ est la distribution de densité de probabilité de trouver deux particules en \mathbf{r}_1 et en \mathbf{r}_2 , et $\rho_N^{(1)}$ est la distribution de densité de probabilité de trouver une particule en \mathbf{r} .

Pour un système homogène, on a d'une part $\rho_N^{(1)} = \rho$, où ρ est la densité du système, et d'autre part la fonction de distribution $\rho_N^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$, qui ne dépend que de la distance relative entre les particules :

$$g_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = g(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|) = \frac{\rho_N^{(2)}(|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|)}{\rho^2} \quad (3.6)$$

Puis, en utilisant la définition mathématique de l'opérateur densité, on écrit la densité comme $\rho_N^{(1)}(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$ et $\rho_N^{(2)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i=1}^N \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_i) \delta(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_j)$, et en ré-exprimant la fonction de distribution de paires comme $g_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \rho(\mathbf{r}_1) \rho(\mathbf{r}_2) = \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_j)$, on obtient finalement pour un système **homogène** et **uniforme** :

$$\rho g_2(|\mathbf{r}|) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i + \mathbf{r}_j) \quad (3.7)$$

Propriétés de la distribution de paires.

La fonction de distribution de paires est une mesure de l'auto-corrélation du champ de densité. Elle mesure la probabilité de trouver une particule à une distance r donnée, depuis une particule quelconque. Autrement dit, $g_2(r)$ est la distribution de probabilité de trouver une particule dans une couronne comprise entre les distances r et $r + dr$. De plus, le nombre moyen de particules dans la couronne sera donné par $\rho g_2(r) dA$, avec dA l'aire de la couronne.

- Pour un liquide $g_2(r)$ présente un pic (figure 3.5) autour de $r = 1$ diamètre de particules, puis montre des modulations et décroît sur une échelle de longueur de corrélation que l'on note ξ . A longue distance $g_2(r)$ tend vers 1, ce qui se traduit par une perte de toute corrélation et correspond à une probabilité uniforme de trouver une particule. Son comportement est alors $g_2(r) \sim \left(1 + \exp\left(-\frac{r}{\xi}\right)\right)$.

- Pour un solide cristallin, l'ordre est à longue distance, $\xi \rightarrow \infty$, ce qui se traduit dans la fonction $g_2(r)$ par la présence de pics qui se maintiennent, même à longue distance.

Comment calculer la fonction de paires ?

Il existe plusieurs méthodes permettant d'implémenter une mesure de $g_2(r)$. Celle que nous avons choisie est assez usuelle et consiste à établir un histogramme de toutes les distances séparant toutes les paires de disques. Un point auquel il est important de faire attention est que notre système est fini. Par conséquent, la distribution des paires pourrait être entachée d'erreurs si nous considérons toutes les distances entre les paires de disques situées dans l'arène. Il est nécessaire d'exclure

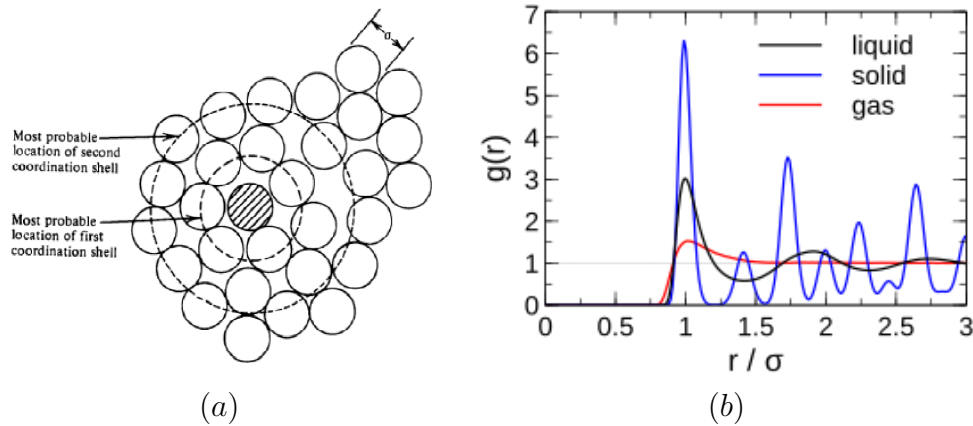


FIGURE 3.5 – **Fonction de paires.** (a) : Une particule entourée de ses différentes couches de voisins. Figure extraite de la Réf. [16]. (b) : Fonction de corrélation de paires typiques d'un gaz (rouge), d'un liquide (en noir) et d'un solide cristallin (en bleu). Résultats d'une simulation numérique d'Argon. La fonction de paires du liquide décroît à longue distance, tandis que celle d'un solide cristallin présente des pics qui s'étendent à longue distance. Figure extraite de la Réf. [17].

les disques situés près des bords, afin de nous assurer que nous ne tenons compte que des paires de disques représentatives de la distribution. Cette remarque étant dite, nous effectuons à tout instant un histogramme de toutes les distances entre les paires de disques situées à une certaine distance du bord de l'arène. Nous normalisons ensuite cet histogramme par le nombre de paires N et par la mesure de l'angle solide. Enfin, nous incrémentons l'historgramme pour différentes réalisations temporelles et nous moyennons l'historgramme sur celles-ci. On obtient finalement :

$$g_2(r) = \left\langle \frac{\sum_{p \neq q} \delta(r - |\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_q|)}{2\pi N r} \right\rangle_t \quad (3.8)$$

Pour l'ensemble des expériences réalisées et dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau (3.1) du haut pour les SPP et dans les tableaux (3.1) du milieu et du bas, nous représentons la fonction de paires sur la figure (3.6), à gauche pour les disques ISO et à droite pour les disques SPP. Le code couleur utilisé va du rouge au bleu pour des densités allant de 0.40 à 0.83.

Commençons en signalant qu'à tout Φ pour les ISO et les SPP le premier pic mesuré est à la distance de $r = 1$ diamètre de disque. Les disques durs de notre expérience ne s'interpénètrent pas, ceci montre que la résolution spatiale de la détection des positions est bonne.

ISO. Les courbes du rouge au vert ($\Phi \leq 0.66$) montrent un premier pic vers 1 diamètre de disque, suivi d'une décorrélation rapide sur une longueur inférieure à 1 diamètre, avec une fonction de paires qui tend rapidement vers 1. L'ordre est à

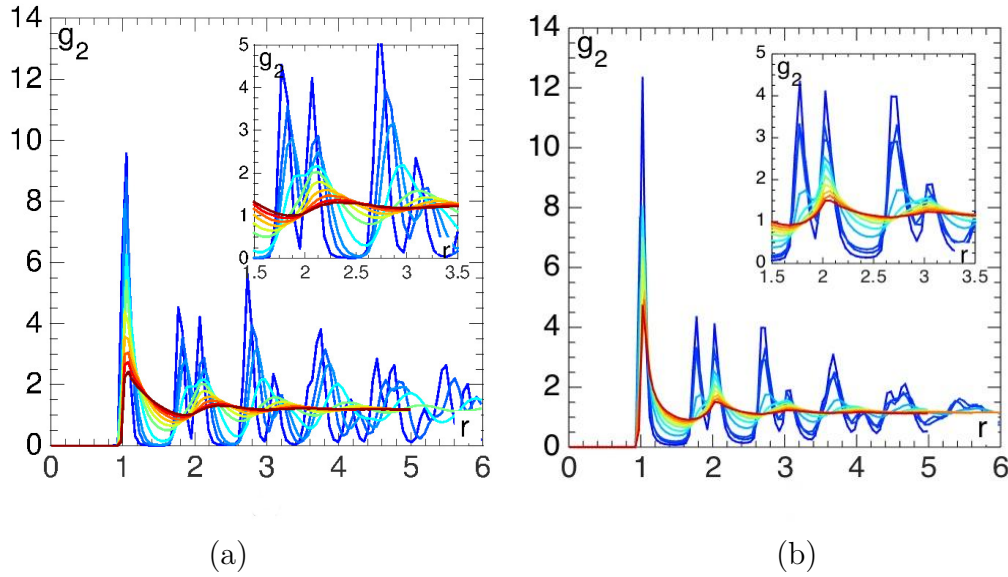


FIGURE 3.6 – **Fonction de corrélation de paires** (a) : Distributions de paires pour les disques ISO. La figure en insert constitue un zoom au niveau des petites distances $r < 4$ (en diamètre de disques). (b) : pour les disques SPP. Le code couleur est présenté dans les tableaux (3.1). Il est le même pour les deux figures : il va du rouge au bleu pour $\Phi \in [0.41 - 0.84]$.

courte portée et le système est liquide. A mesure que Φ augmente, un deuxième pic grandit près de la distance $r = 2$ et l'on observe aussi la présence de plus en plus forte de modulations au-delà de cette distance. Ainsi, lorsque le liquide se densifie, les corrélations en positions deviennent plus importantes à grande distance.

La courbe bleue claire codant pour un $\Phi \sim 0.71$ montre un changement radical dans le comportement de $g_2(r)$: nous n'observons plus de décroissance rapide. Le pic autour de $r = 1$ se resserre et celui localisé autour de 2 diamètres pour la courbe verte se dédouble lors du passage à la courbe bleue claire. Pour comprendre ce dédoublement du second pic lors du passage de la courbe verte à la courbe bleue claire, intéressons-nous à la structure du réseau hexagonal au packing maximal de 0.905 d'un cristal de disques durs. La première couche de voisins est située à 1 diamètre de disque, puis deux couches distinctes mais très proches en r se succèdent, l'une située en $r = \sqrt{3} \sim 1.73$, et l'autre en $r = 2$ diamètres de disques. Ainsi, pour un solide cristallin de disques durs à l'arrangement hexagonal compact, la distribution $g_2(r)$ montrerait deux pics autour de ces distances. On en déduit alors que le dédoublement du second pic signe l'émergence d'un réseau hexagonal. Néanmoins, le système n'étant pas à l'arrangement hexagonal compact, les pics sont décalés vers de plus grandes valeurs de r . Enfin, à plus grande distance, le $g_2(r)$ montre de plus fortes oscillations et des pics mieux prononcés qu'aux valeurs de Φ inférieures.

Pour des densités supérieures à 0.71, on observe que tous les pics présents pour la courbe bleue claire à $\Phi \sim 0.71$ augmentent en taille et se décalent vers les plus petites distances, ce qui témoigne d'une compression homogène.

On en conclut qu'à la densité $\Phi \sim 0.71$ représentée par la courbe bleue claire le système marque une transition structurale avec l'émergence d'un ordre hexagonal.

SPP. Pour $\Phi \in [0.40 - 0.65]$, donc pour les courbes du rouge au vert, on observe un premier pic situé à 1 diamètre de disque avec un ordre qui relaxe rapidement, suivi de quelques légères modulations dans la distribution, mais la fonction de paires tend rapidement vers 1. Le système est donc désordonné. Cependant, on note une première différence dans le comportement du $g_2(r)$ entre les SPP et les ISO dans la hauteur du premier pic, qui est légèrement plus grand dans le cas des SPP. Ceci témoigne d'une plus forte corrélation à très courte distance dans le cas des SPP, dès la phase liquide. Par ailleurs, pour un système à l'équilibre, il est possible de faire le lien entre la hauteur du premier pic et la pression dans le système. Si on accepte d'étendre la procédure au cas présent, on conclut que la pression dans l'état liquide de SPP est plus importante que dans le cas des ISO. Ceci est conforme avec nos observations sur la pression mécanique, illustrée dans le chapitre 5 de ce manuscrit.

Une transition est marquée également par la courbe bleue claire vers $\Phi \sim 0.71$. On observe à nouveau un dédoublement du second pic dans le passage de la courbe verte à la courbe bleue claire. Cependant deux différences sont à rapporter. La première est que le second pic de la distribution se localise très près de la valeur $\sqrt{3}$, et la deuxième différence est que l'ordre s'évanouit à grande distance. La fonction de paires montre de plus fortes corrélations à courtes distances pour les disques SPP, mais ne semble pas changer de forme : l'ordre s'étend toujours à courte distance. Cette mesure renforce les observations de la figure (3.4) : sur de courtes distances, les disques polaires s'organisent dans une structure hexagonale très dense, mais sur de longues distances les corrélations en position se perdent.

La structure semble se mettre en place à mesure que l'on augmente la densité. Le système se comprime très peu sur les petites distances car les disques se sont déjà organisés dans une structure très compacte. En particulier, nous n'observons pas de décalage des pics vers les courtes distances comme ce fut le cas pour les disques ISO. Néanmoins, les pics se resserrent et se piquent davantage, suggérant que le nombre de disques participant à la structure sur les courtes distances augmentent avec Φ .

On en conclut que l'étude de la distribution de paires pour les disques ISO montre une transition claire entre un état sans structure pour des $\Phi < 0.71$, suivie d'une structure cristalline uniforme vers $\Phi \sim 0.71$, qui se comprime de manière homogène au-delà. Donc les ISO pourraient se comporter comme des disques durs d'équilibre. Dans le cas des SPP, nous observons des corrélations à courte distance légèrement plus importantes que pour les disques ISO dans la phase liquide. Puis un changement structurel semble apparaître autour de $\Phi \sim 0.71$ (que l'on notera par la suite Φ^+),

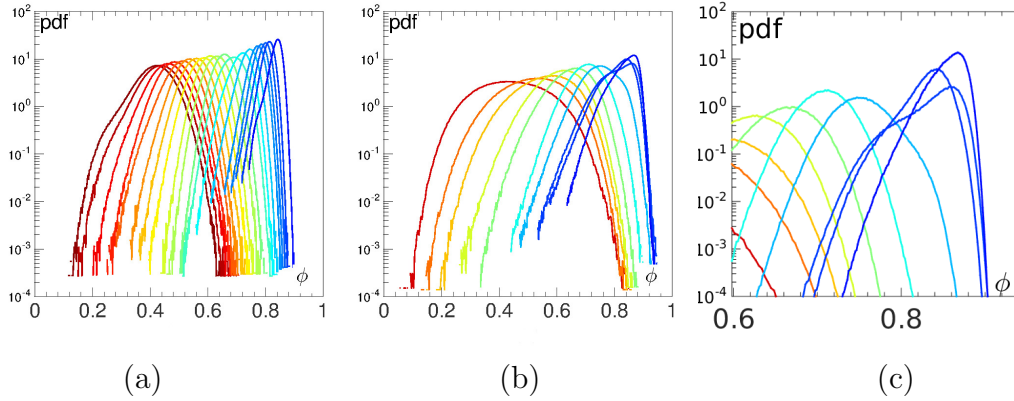


FIGURE 3.7 – **Distribution du champ de densité locale en fonction de Φ**
 (a) : pour les disques ISO. (b) : Pour les SPP. (c) : Zoom sur les distributions à haute densité pour les SPP. Le code couleur est présenté dans les tableaux (3.1).

même si le comportement aux grandes distances reste identique. En effet, à partir de 0.71 et jusqu'à 0.84, nous observons que les disques s'organisent sur un réseau hexagonal compact à courte distance, mais que les corrélations s'atténuent fortement à grande distance. Les disques SPP ne cristallisent pas de façon homogène. L'image d'une transition du 1^{er} ordre se renforce.

3.4.2 Triangulation de Delaunay et tessellation de Voronoï, pour une étude plus approfondie de la structure

A tout instant, nous pouvons extraire d'autres d'informations liées à la structure grâce à une triangulation de Delaunay, une méthode permettant de définir un réseau de voisinage dans l'espace réel. Son réseau dual est appelé la tessellation de Voronoï et définit un pavage de l'espace avec des cellules contenant un seul disque, sans recouvrement entre les cellules.

A l'issue de la triangulation de Delaunay, nous obtenons pour chaque point p une liste de ses plus proches voisins qui sont les points situés aux sommets de tous les triangles auxquels appartient p . On associe à chaque cellule de la tessellation de Voronoï, une fraction surfacique locale $\Phi = \frac{a}{A}$, où $a = \frac{\pi d^2}{4}$, avec la surface d'un disque de diamètre d et A l'aire de la cellule.

On s'intéresse maintenant à la distribution des densités locales des disques, que l'on représente sur la figure (5.10) aux différentes fraction surfacique Φ . Les distributions relatives aux disques ISO sont représentées à gauche et celles pour les disques SPP figurent à droite.

ISO. Les distributions sont quasiment uni-modales, quelle que soit la fraction surfacique. Le maximum de ces distributions coïncide presque avec la fraction surfacique

globale du système ($\Phi = Na/A_{arene}$). De plus, ces distributions sont de moins en moins larges et de plus en plus piquées à mesure que Φ augmente, ce qui signifie que le système est de plus en plus homogène en densité.

SPP. Les distributions représentées par les courbes du rouge au vert pomme ($\Phi \in [0.41 - 0.65]$) sont peu piquées et très larges. Puis celles-ci se resserrent. Ensuite pour les très hautes fraction surfacique $\Phi > 0.75$, un deuxième mode croît, dont nous montrons un zoom sur la figure (5.10).

Les variances importantes de ces distributions confirment la présence de fortes hétérogénéités même pour $\Phi < 0.71$. Puis, le passage d'une distribution presque uni-modale à une distribution bimodale au voisinage de la transition, indique une coexistence entre une phase dense ordonnée et une phase moins dense désordonnée. Cette différence dans le comportement des distributions marque un changement net et significatif de la transition de cristallisation des disques polaires vis-à-vis de celle des disques durs isotropes.

Après s'être intéressés à l'ordre translationnel, passons à l'ordre orientationnel.

3.4.3 Ordre orientationnel

Définition.

Un cristal de disques durs à $2d$ est orienté selon les directions d'un hexagone (figure 3.8). Il est usuel de définir un champ local qui mesure l'orientation relative des particules et leurs déviations par rapport à un réseau hexagonal. On note ce champ $\Psi_6^j = \frac{1}{n_v} \sum_{\langle kj \rangle} e^{i\theta_{jk}}$. L'angle θ_{jk} est l'angle que fait le vecteur liant deux particules voisines avec un axe de référence arbitraire (voir figure 3.8), $\sum_{\langle kj \rangle}$ dénote la somme sur les voisins de la particule j , et n_v est le nombre de voisins.

Ψ_6^j est un complexe. Sa phase donne l'orientation absolue des voisins. Son module mesure la déviation par rapport à l'ordre hexagonal parfait.

Dans notre étude, nous nous intéressons au passage d'un état *a priori* sans structure à un état hexagonal. Nous ne considérons alors pas les fluctuations d'orientations et nous avons uniquement considéré le module de $\|\Psi_6\|$ (noté $\Psi_{\|6\|}$) comme paramètre d'ordre local.

Calcul du Ψ_6 .

Partant des positions des disques à un pas de temps, nous construisons la triangulation de Delaunay qui définit un type de voisinage topologique. Un disque i se situe à un sommet, qui est à la réunion de plusieurs triangles. L'ensemble des disques j appartenant aux mêmes triangles que i sont considérés comme ses voisins.

Pour chaque disque, nous calculons le champ complexe $\Psi_6^j = \frac{1}{n_v} \sum_{\langle kj \rangle} e^{i\theta_{jk}}$ et son

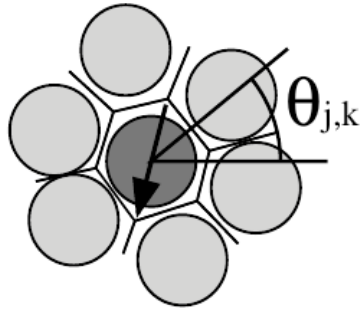


FIGURE 3.8 – Cellule de Voronoï d’une particule j entourées de ses voisines k . Extrait de la réf. [5]. Le polygone entourant la particule centrale représente sa cellule de Voronoï. Les bords de la cellule sont à l’interface entre la particule j et une de ses plus proches voisines k . L’angle $\theta_{j,k}$ est celui que fait la droite joignant les centres des particules j et k avec un axe arbitrairement choisi qui dans cet exemple correspond à l’axe horizontal. Donc $\theta_{j,k}$ est l’orientation d’une particule j avec une particule k . Il intervient dans la mesure du champ complexe $\Psi_6(\mathbf{r}_j)$. La flèche noire attachée au disque central correspond à la direction du champ complexe Ψ_6^j , et indique l’orientation de la particule j par rapport l’ensemble des ses voisines.

module $\|\Psi_6^j\|$. Pour réduire les fluctuations spatiales de ces champs, à très courte distance, nous avons procédé à un *coarse-graining* spatial : pour chaque disque nous moyennons le champ local avec celui de ses voisins.

Nous nous intéresserons à la propagation spatiale de l’ordre orientationnel grâce à la mesure de l’auto-corrélation spatiale du champ $\Psi_{\|6\|}^p$, puis nous en étudierons la statistique temporelle en fonction de Φ . Mais tout d’abord, nous souhaitons illustrer qualitativement l’état statique du système.

Instantanés de $\Psi_{\|6\|}^p$.

Nous représentons sur la figure (3.9) des instantanés de cartes de Voronoï du champ local de $\Psi_{\|6\|}$ pour différentes densités, pour les disques ISO en haut et les disques SPP en bas. La couleur des cellules est fonction de la magnitude du champ $\Psi_{\|6\|}$, variant du bleu au jaune pour $\Psi_{\|6\|}$ qui varie de 0.4 à 1.

ISO. Dans la phase liquide ($\Phi = 0.66$) l’ordre orientationnel est faible, les cellules sont majoritairement bleues, seules quelques cellules jaunes sont présentes ce qui témoigne de la formation spontanée de cristallites, dues à certaines fluctuations de densités.

A $\Phi = 0.71$, on est au seuil de la cristallisation, l’ordre orientationnel est présent sur un grand domaine. On observe néanmoins une zone désordonnée sur le haut de la figure. La coexistence indique la présence d’une transition.

Lorsque Φ augmente, l’ordre s’étend de façon homogène sur l’ensemble du système

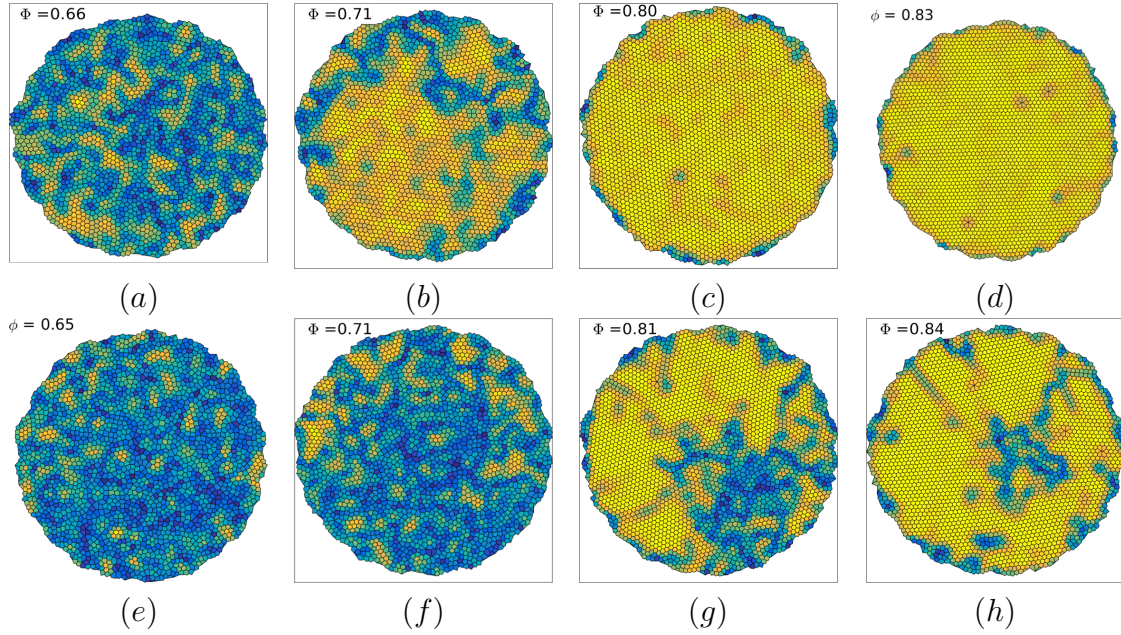


FIGURE 3.9 – Cartes des cellules de Voronoï coloriées selon l’intensité du champ $\Psi_{\parallel 6}$ du bleu (= particule désordonnée) au jaune (= particule ordonnée) pour des valeurs du champ allant d’environ 0.4 à 1. Les figures (a)-(d) correspondent aux disques ISO à des $\Phi \in [0.66, 0.71, 0.80, 0.83]$. Les figures (e)-(h) correspondent aux disques ISO à des $\Phi \in [0.65, 0.71, 0.81, 0.84]$.

et le jaune gagne en intensité ce qui signifie que l’ordre orientationnel est de plus en plus fort. Par ailleurs, on perçoit certaines cellules non hexagonale qui marquent la présence de quelques lacunes dans la structure.

SPP. Dans la phase liquide ($\Phi = 0.65$), le système montre un ordre instantané orientationnel très faible et équivalent à celui des ISO. Il est intéressant de voir que les fluctuations spatiales sont plus marquées à cette densité pour les ISO que pour les SPP.

Pour $\Phi = 0.71$, la différence par rapport aux disques ISO à ce même Φ est très nette ; l’ordre hexagonal est moins important que pour le cas des ISO. Quelques agrégats sont apparus en ayant un fort ordre orientationnel. De plus, l’ordre y est plus important que dans le cas des ISO à $\Phi = 0.80$ comme en témoigne l’intensité des cellules au cœur des cellules. Cela montre la tendance que les disques SPP ont tendance à former des structures hexagonales compacts sur les courtes distances, et le corrolaire semble être qu’elles laissent davantage de places autour d’elles et donc le système est peu ordonné.

Le passage de 0.71 à 0.81 laisse penser à un processus de croissance au cours duquel les agrégats se seraient regroupés pour n’en former qu’un seul dominant. Le système est clairement hétérogène comme nous l’avions déjà remarqué sur les instantanés

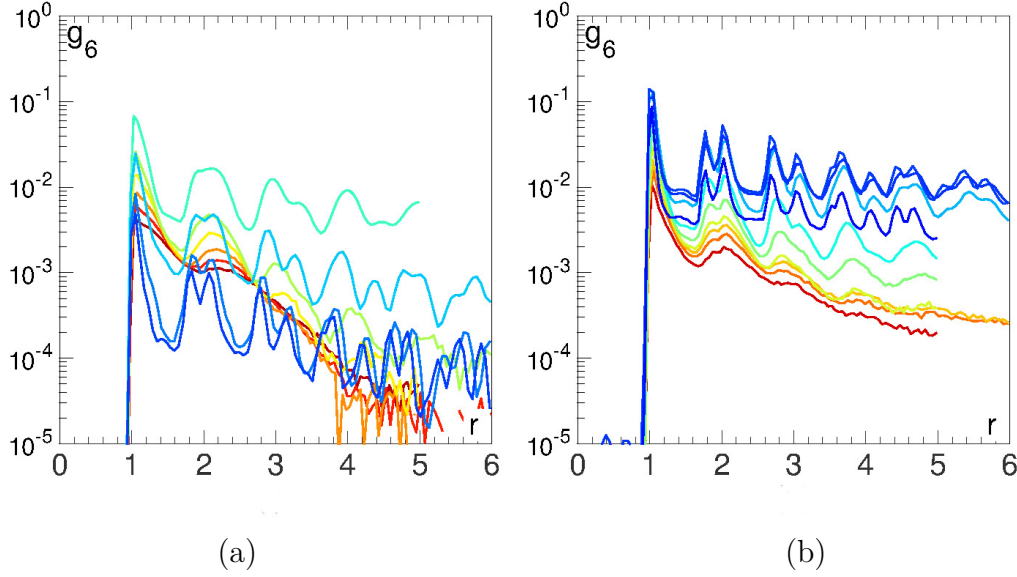


FIGURE 3.10 – **Auto-corrélation de $\Psi_{\parallel 6\parallel}$** (a) : Distribution pour les disques ISO. (b) : De même pour les disques SPP. Le code couleur est présenté dans les tableaux (3.1), et est le même pour les deux figures : il va du rouge au bleu pour $\Phi \in [0.41 - 0.84]$.

de la figure (3.4). Mais les cellules désordonnées sont aussi présentes en nombre importants à l'intérieur du domaine ordonné, ce qui traduit certainement la présence d'excitations ou de lacunes à l'intérieur du domaine.

Le passage de 0.81 à 0.84 semble correspondre à une transition de percolation : un agrégat domine largement et est continue. On observe, néanmoins toujours des zones désordonnées à l'extérieur et à l'intérieur du domaine ordonné.

Ces instantanés renforcent l'hypothèse établie précédemment : un régime de coexistence apparaît pour $\Phi \sim 0.71$. Celui-ci se prolonge sur une large gamme de densités où l'on a d'abord de la croissance de cristallites, puis de l'agrégation et de la percolation. Ce scénario laisse à nouveau penser à un scénario de transition du premier ordre.

Auto-corrélation de $\Psi_{\parallel 6\parallel}(r_p)$

La fonction d'auto-corrélation du champ de $\Psi_6(r)$, que l'on note usuellement g_6 , se définit comme ceci :

$$g_6(r) = \langle \Psi_6^*(r) \Psi_6(0) \rangle \quad (3.9)$$

ou de façon analogue

$$g_6(r) = \left\langle \frac{\sum_{p \neq q} \Psi_6^p \Psi_6^q \delta(r - |\mathbf{r}_p - \mathbf{r}_q|)}{2\pi N(N-1)r} \right\rangle. \quad (3.10)$$

Elle s'interprète de la même façon que la fonction $g_2(r)$. Cependant, au lieu de regarder la corrélation du champ de densité, on regarde la corrélation du champ orientationnel local.

Rappelons que dans une phase liquide l'ordre est à courte portée, donc $g_6(r)$ suit une loi exponentielle ($e^{-\frac{r}{\xi_6}}$, où ξ_6 est la longueur de corrélation). Dans la phase hexatique, l'ordre est à quasi longue distance, $g_6(r)$ suit une loi de puissance ($g_6(r) \sim r^{-\eta}$). Enfin, dans la phase cristalline l'ordre est à longue distance, donc $g_6(r)$ tend vers une constante en $r \rightarrow \infty$.

Calcul pratique du g_6 .

Elle se calcule par la construction d'un histogramme des valeurs du champs de $\Psi_{\parallel 6}^p$, pour toutes les paires de particules à une distance r à chaque instant t . Puis nous normalisons cet histogramme, et nous moyennons sur différentes réalisations temporelles. On représente sur la figure (3.10) les courbes de l'auto-corrélation du champ Ψ_6^p . La figure de gauche est relative aux disques ISO et celle de droite aux disques SPP. Le graphe est en log-lin.

ISO. Pour $\Phi \in [0.41 - 0.58]$, les courbes du rouge au jaune sont des droites en log-lin. On en déduit une décroissance exponentielle et un ordre orientationnel qui s'étend à courte distance, comme on s'y attend dans un liquide.

La courbe verte, relative à $\Phi = 0.66$, marque un premier changement de comportement dans la décroissance du g_6 . Les corrélations ne décroissent plus linéairement et deviennent très importantes. Par ailleurs, des pics mieux prononcés montrent de fortes corrélations à certaines distances.

La courbe bleue claire qui suit juste après, pour $\Phi = 0.71$, montre un deuxième changement de comportement dans la distribution g_6 . En effet, lors du passage de la courbe verte à la courbe bleue claire comme pour l'étude du $g_2(r)$, nous observons un dédoublement du second pic symbolisant le fait que les disques s'organisent dans un réseau hexagonal. Puis les corrélations diminuent, montrant d'abord une décroissance rapide, et saturant vers une constante à longue distance. Ce comportement témoigne alors de l'entrée dans la phase cristalline pour les disques ISO à proximité de la fraction surfacique $\Phi \sim 0.71$.

Comme pour le champ orientationnel, les disques ISO semblent se comporter comme des disques d'équilibre, où le passage de l'état liquide à celui de cristal se ferait en deux temps autour de la valeur de $\Phi \sim 0.71$.

SPP. L'ordre est à courte portée dans la phase liquide (courbes rouge à jaune).

A l'instar des ISO les corrélations de $\Psi_{\parallel 6}^p$ changent de formes à la fraction surfacique $\Phi \sim 0.68$ représentée par la courbe verte. Puis, la structure hexagonale compacte apparaît clairement aux courtes distances pour la courbe bleue claire pour un $\Phi \sim 0.71$.

Cependant, on remarque à nouveau une différence notable avec les disques ISO. Pour Φ allant de 0.71 à 0.84, le g_6 conserve la même forme. Les corrélations se maintiennent élevées et ne redescendent pas comme nous venons de le voir pour les ISO.

Il semblerait donc que les disques SPP quittent la phase liquide pour une nouvelle phase vers $\Phi \sim 0.71$. Au-delà de cette fraction surfacique, les SPP se maintiennent dans cette nouvelle phase et ne semblent pas entrer dans une phase cristalline homogène.

Nous observons une nette différence dans l'auto-corrélation spatiale du champ $\Psi_{\parallel 6\parallel}$ entre les deux espèces de disques. On peut alors se demander comment l'ordre orientationnel varie dans le temps, comment évolue sa moyenne et l'amplitude de ses fluctuations en fonction de Φ .

Statistiques temporelles des paramètres d'ordre orientationnel

Pour un Φ donné, à chaque instant t nous calculons d'une part la moyenne sur l'ensemble des disques du champ $\Psi_{\parallel 6\parallel}^j(t)$ et d'autre part le module de la moyenne du champ $\Psi_6^j(t)$. On obtient deux séries temporelles réelles que l'on note :

$$\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t) = \frac{1}{N} \sum_j \Psi_{\parallel 6\parallel}^j(t), \quad (3.11)$$

$$\bar{\Psi}_6(t) = \left| \frac{1}{N} \sum_j \Psi_6^j(t) \right| \quad (3.12)$$

Nous notons leur moyenne temporelle $\langle \bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t) \rangle_t$ et $\langle \bar{\Psi}_6(t) \rangle_t$. Enfin nous caractérisons leurs fluctuations par les susceptibilités $\chi_{\parallel 6\parallel} = N \text{var}(\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t))$ et $\chi_6 = N \text{var}(\bar{\Psi}_6(t))$.

La figure (3.11) représente l'évolution de ces quatre quantités en fonction de Φ . On y a juxtaposé les résultats relatifs aux disques ISO (représentés par des cercles) et aux SPP (représentés par des triangles).

La rangée supérieure de la figure (3.11) décrit le comportement du champ $\Psi_{\parallel 6\parallel}$. Tant pour les ISO, que pour les SPP, on note que la valeur $\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t)$ n'est pas nulle, et vaut 0.4 dans l'état liquide. Cela vient du fait que nous moyennons la valeur absolue du champ local. Les fluctuations spatiales d'orientation ne sont pas prises en compte.

ISO. La moyenne temporelle de $\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t)$ (voir figure (3.11-a)) croît jusqu'à atteindre une valeur proche de 1 à très haute densité. La courbe de la moyenne en fonction de Φ montre un changement de pente, et un point d'inflexion autour de la valeur

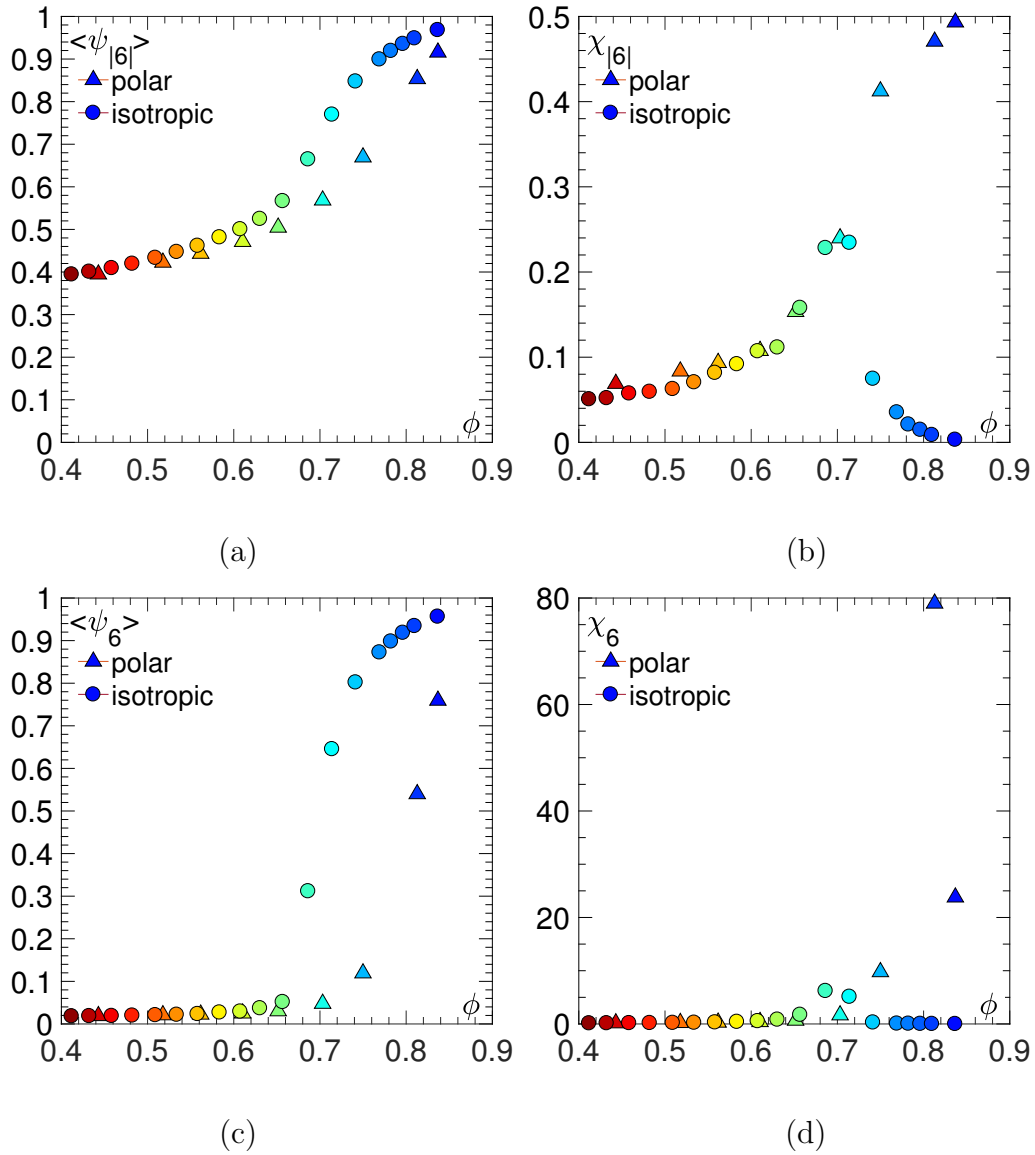


FIGURE 3.11 – **Moyenne et susceptibilité du paramètre d'ordre orientational.** Haut : Moyenne (a) et variance (b) de $\bar{\Psi}_{||6|}(t)$ en fonction de la fraction surfacique Φ . Bas : Moyenne (c) et variance (d) de $\bar{\Psi}_6(t)$ en fonction de la fraction surfacique Φ . Les ronds correspondent aux ISO et les triangles aux SPP. Le code couleur est le même que précédemment.

de $\Phi = 0.71$. Par ailleurs, les fluctuations du champ (voir figure (3.11-b)) sont très faibles et grandissent progressivement jusqu'à atteindre un pic autour de $\Phi = 0.71$, puis les fluctuations diminuent très rapidement et deviennent à nouveau très faibles, voire quasiment nulles à haute fraction surfacique. Le point d'inflexion et le pic dans les fluctuations confirment à nouveau une transition quasi-continue à $\Phi \sim 0.71$ pour les disques ISO.

SPP. La moyenne temporelle de $\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t)$ (voir figure (3.11-a)) croît de façon monotone. La concavité reste la même à tout Φ ; on n'observe pas de point d'inflexion. La valeur de la moyenne est toujours inférieure à celle des ISO. Les fluctuations (voir figure (3.11-b)) sont du même ordre jusqu'à $\Phi \sim 0.71$, cependant celles-ci continuent à croître au delà de $\Phi \sim 0.71$. Une susceptibilité (les fluctuations temporelles) importante signifie que des domaines importants de disques perdent et acquièrent régulièrement de l'ordre orientationnel.

La rangée inférieure de la figure (3.11) décrit le comportement du champ Ψ_6 . Cette fois, tant pour les ISO que pour les SPP, sa valeur moyenne est proche de zéro dans la phase désordonnée, du fait que les fluctuations d'orientations sont prises en compte.

ISO. La moyenne temporelle de $\bar{\Psi}_6(t)$ (voir figure (3.11-c)) capture maintenant très bien la transition de cristallisation. Du point de vue des fluctuations (voir figure (3.11-d)), on observe encore une fois un pic autour de $\Phi = 0.71$, qui atteint des valeurs plus importantes que dans le cas précédent. Ceci confirme la présence d'une transition qui apparaît bien quasi-continue.

SPP. Les données sont plus délicates à interpréter. Cependant on observe clairement que la moyenne de $\bar{\Psi}_6(t)$ (voir figure (3.11-c)) présente une transition plus marquée entre une phase désordonnée et une phase ordonnée que celle de $\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t)$. Du point de vue des fluctuations (voir figure (3.11-d)), nous manquons de données au voisinage de cette transition, mais on observe bien que la susceptibilité d'une part peut atteindre de très grandes valeurs au voisinage de la transition, d'autre part qu'elle est à nouveau plus faible dans la phase ordonnée à plus haute fraction surfacique. Ceci laisserait penser qu'il y a peut-être aussi une transition continue dans le cas des SPP vers la phase ordonnée pour $\phi \simeq 0.8$. Pour trancher, il serait nécessaire de réaliser une série d'expériences complémentaires centrées autour de cette valeur.

Distribution des $\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t)$

Sur la figure (3.12) on représente la distribution des $\bar{\Psi}_{\parallel 6\parallel}(t)$ pour les ISO à gauche et pour les SPP à droite.

Pour les ISO et les SPP les distributions sont semblables pour les cinq plus basses fractions surfaciques représentées par les courbes du rouge au vert pomme. Les

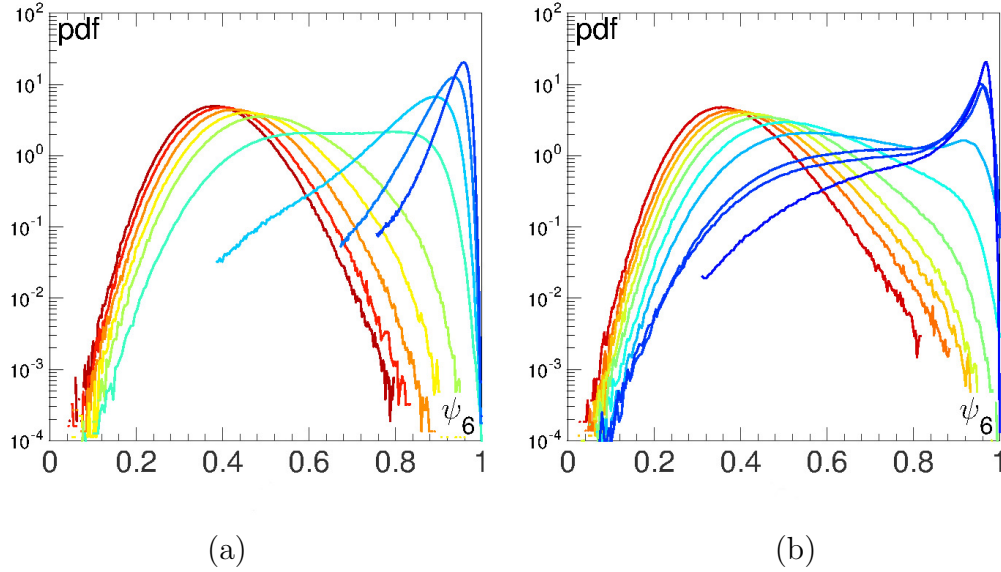


FIGURE 3.12 – **Distribution du champ $\Psi_{\parallel 6}$ en fonction de Φ** (a) : pour les disques ISO. (b) : Pour les SPP. (b) : pour les disques SPP.

distributions sont piquées, avec une valeur probable proche des valeurs moyennes relevées sur la figure (3.11). Par ailleurs, ces distributions sont assez larges, ce qui confirme la présence de fortes hétérogénéités dans l'ordre orientationnel, comme observé sur la figure (3.9) des instantanés du champ.

Pour $\Phi \sim 0.71$ la distribution s'élargit et s'aplatit pour les deux espèces de disques (courbe bleue claire). Ceci suggère une coexistence de plusieurs cristallites d'ordre orientationnel.

Au-delà de 0.71, la distribution se resserre et devient de plus en plus uni-modale et piquée, pour les ISO. Centrée en 0.9 avec une variance qui diminue, le système gagne en homogénéité lorsque Φ augmente. Pour les SPP, le mode à 0.9 grandit aussi fortement mais une queue dans la distribution vers les plus basses valeurs de $\bar{\Psi}_{\parallel 6}(t)$ persiste jusqu'à $\Phi = 0.84$, signifiant la présence de fortes hétérogénéités spatio-temporelles.

3.4.4 Conclusions sur la structure

Dans cette partie nous nous sommes focalisés sur l'étude de la structure du système en fonction de la fraction surfacique Φ . Nous avons calculé la fonction de corrélation de paires $g_2(r)$ et la fonction d'auto-corrélation $g_6(r)$. Ces deux mesures permettent de caractériser l'ordre translationnel et l'ordre orientationnel. Le changement de comportement de ces deux fonctions révèle un changement de phase.

Nous obtenons deux visions très différentes pour la transition des ISO et des SPP :

1. Bien que les disques ISO ne soient pas des disques durs d'équilibre, ils développent néanmoins une cristallisation proche de celle de l'équilibre de disques durs. Partant d'un liquide homogène que l'on comprime, le système acquiert d'abord de l'ordre orientationnel, puis de l'ordre translationnel vers une fraction surfacique de $\Phi \sim 0.71$, cette valeur étant proche de celle observée à l'équilibre thermodynamique. Ayant un système fini et une résolution assez pauvre en Φ , nous ne pouvons pas discuter de la nature de la transition, même s'il semble qu'elle soit quasi-continue comme le montre le pic dans les fluctuations de la susceptibilité $\chi_{\parallel 6\parallel}$. Une fois que le système entre dans sa phase solide, le système est homogène et se comprime de manière homogène.
2. Même dans la phase liquide, les SPP montrent davantage de corrélations à courte distance (~ 2 diamètres de disques). Il est remarquable de voir que pour $\Phi \sim 0.71$, le système de SPP montre aussi un changement de structure. Des cristallites s'organisent en réseau hexagonal dense et compact, mais uniquement sur de courtes distances. Peu-à-peu, l'ordre orientationnel se développe tandis que l'ordre translationnel reste à courte distance. Ceci nous amène à dire que nous n'obtenons pas de cristal uniforme.

La vision statique que l'on peut se faire des disques SPP à haute densité est celle d'un système très hétérogène, dans lequel coexistent deux phases distinctes avec des cristallites denses et une région désordonnée. Plus la fraction surfacique augmente, plus les cristallites augmentent en taille, jusqu'à fusionner puis percoler.

Cependant, on peut se demander si les régions dans lesquelles se développent les deux phases restent figées au cours du temps. En effet, cette vision instantanée d'une coexistence statique entre deux phases est à nuancer à la lumière des mesures de la susceptibilité $\chi_{\parallel 6\parallel}$. En effet, cette dernière croît avec Φ ce qui laisse penser que des domaines changent brutalement d'ordre, et donc que des disques passent collectivement d'une phase à l'autre même lorsque le système a percolé.

3.5 Dynamique

Nous commencerons l'étude de la dynamique en montrant quelques trajectoires typiques de disques en fonction de Φ , puis nous passerons à une étude plus quantitative en mesurant le déplacement quadratique moyen des disques, ainsi que le facteur de structure dynamique, qui traduit la décorrélation temporelle des fluctuations de densités.

3.5.1 100 trajectoires individuelles de disques ISO et SPP prises au hasard

Sur la figure (3.13), nous représentons en haut les trajectoires de disques ISO pour $\Phi \in [0.66, 0.83]$ respectivement à gauche et à droite, et en bas les trajectoires de SPP pour $\Phi \in [0.71, 0.84]$.

Dans l'état liquide, à $\Phi = 0.66$, on observe que les trajectoires des ISO diffusent librement dans l'espace. Au contraire dans l'état cristallin, à $\Phi = 0.80$, les trajectoires restent concentrées en espace, les disques ISO étant piégés par leurs voisins. On devine à présent un comportement proche de l'équilibre pour les disques ISO : lorsque l'on intègre la phase cristalline, les disques restent piégés et vibrent dans leur cage.

A $\Phi = 0.71$, on constate pour les disques SPP que les trajectoires sont étendues et recouvrent l'ensemble de la surface du plateau. Elles explorent facilement l'espace. Les portions de trajectoires encore relativement linéaires montrent que les SPP continuent à se déplacer de façon balistique. A $\Phi = 0.84$, on observe que plus on s'éloigne du centre, plus les trajectoires sont étirées et circulaires. Ceci laisse penser que les SPP forment de larges vortex dans lesquelles les SPP tournent collectivement dans l'arène.

Quels sont les disques SPP qui bougent et ceux qui ne bougent pas dans l'arène ? L'étude statique a suggéré une coexistence d'états entre une phase dense et une phase liquide. On peut alors supposer que les disques du liquide participent au déplacement, mais qu'en est-il de ceux dans les agrégats ? Sont-ils advectés par le liquide ? Se déplacent-ils ? Vibrent-ils à leur position ? Nous répondons à ces questions dans la partie suivante.

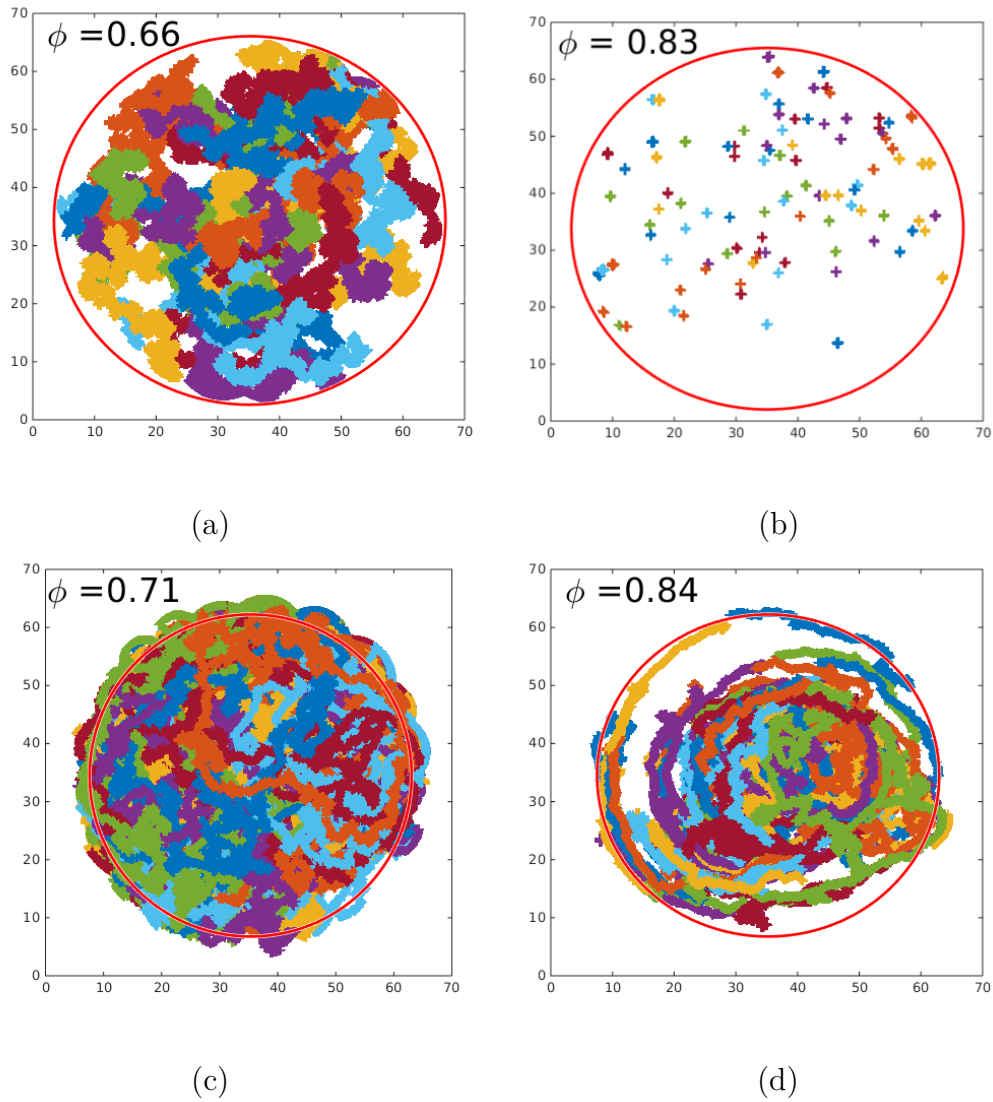


FIGURE 3.13 – **Trajectoires de quelques disques** (a) et (b) : pour les disques ISO pour $\Phi \in [0.66, 0.83]$. (c) et (d) : pour les disques SPP pour $\Phi \in [0.71, 0.84]$. Le cercle rouge délimite la région d'intérêt qui vaut environ 28 diamètres de disques.

3.5.2 Déplacements quadratiques moyens des disques

Définition.

Pour caractériser la dynamique d'un système de particules, nous calculons le déplacement quadratique moyen (MSD) :

$$\Delta^2(\tau) = \left\langle \frac{1}{N} \sum_p (\mathbf{r}_p(t + \tau) - \mathbf{r}_p(t))^2 \right\rangle \quad (3.13)$$

Où $\langle \cdot \rangle$ représente une moyenne sur le temps.

Pour un liquide d'équilibre nous nous attendons à un régime inertiel aux temps courts donc à une MSD de la forme $\Delta^2(\tau) \propto \tau^2$. Dans ce régime, les particules se déplacent librement en ligne droite. La durée du régime inertiel dépend de la densité qui fixe le libre parcours moyen des disques. Ensuite, nous passons à un régime diffusif, qui est induit par les collisions. De façon plus générale, le MSD se comporte comme $\Delta^2(\tau) \propto D_\alpha \tau^\alpha$, avec $\alpha = 1$ pour une dynamique purement diffusive, $\alpha > 1$ pour une dynamique superdiffusive, et $\alpha < 1$ dans le cas d'une dynamique sous diffusive.

Pour un liquide de disques durs d'équilibre, on s'attend à observer un régime diffusif aux temps longs, puis un régime de plus en plus sous diffusif lorsque la densité augmente jusqu'à atteindre un plateau lorsque l'on intègre la phase cristalline. Dans cette phase les particules sont piégées dans des cages durant des temps infiniment longs. Il est à noter qu'un cristal d'équilibre présente toujours une certaine concentration de lacunes. Ces lacunes seront responsables du transport des particules sur des temps beaucoup plus longs.

En pratique.

Défini par l'équation (3.13), le MSD fait intervenir une moyenne que l'on peut réaliser sur le temps et sur les particules. Nous regardons la trajectoire d'une particule pour un incrément de temps τ fixé, et nous faisons la moyenne sur l'ensemble des déplacements au cours du temps. Nous répétons cette mesure pour toutes les particules situées dans la région d'intérêt (ROI) et nous moyennons l'ensemble des déplacements de toutes les particules. Cette décomposition en deux moyennes permet d'accumuler davantage de statistiques et donc d'être plus précis sur le calcul du MSD.

Nous avons dans un premier temps calculé la MSD comme expliqué précédemment. Pour certaines des expériences avec les ISO, nous avons pu détecter la présence d'une rotation d'ensemble qui biaise la mesure des MSD. Ceci est assez commun dans les expériences de granulaires vibrés (Réf. [14]). Pour le calcul des MSD nous travaillons avec des déplacements auxquels nous retirons un déplacement induit par la rotation de corps solide afin de nous assurer de ne tenir compte que des déplacements induits par des fluctuations de densité.

Identification et suppression de la convection.

Pour chaque disque (noté q) nous connaissons la trajectoire de son centre de masse $\mathbf{r}_q(t) = (r_q^x(t), r_q^y(t))_{\vec{e}_x, \vec{e}_y}$, où les vecteurs sont les vecteurs de base dans le repère de l'image.

Dans un premier temps, nous souhaitons comparer le déplacement $\overrightarrow{(r_q(t)r_q(t+\tau))}$ d'un disque entre deux positions aux instants t et $t+\tau$ au déplacement du disque s'il avait simplement subi une rotation. Nous écrivons $f_{\theta(\tau), \vec{\Omega}(t)}(M_t)$ la rotation autour du centre $\vec{\Omega}(t)$ qui fait tourner le point à la position $(r_q^x(t), r_q^y(t))$ au temps t d'un angle $\theta(\tau)$ entre les instants t et $t+\tau$. Pour évaluer l'angle et le centre de rotation au temps t de coordonnées $(\Omega_{x,t}, \Omega_{y,t})$, nous écrivons la fonction des moindres carrés :

$$\chi(\theta(\tau), \Omega_x, \Omega_y) = \Sigma_p \|\overrightarrow{r_q(t)r_q(t+\tau)} - f_{\theta(\tau), \vec{\Omega}(t)}(r_q(t))\|^2 \quad (3.14)$$

puis nous minimisons $\chi(\theta(\tau), \Omega_x, \Omega_y)$, en résolvant $\vec{\nabla} \chi = \vec{0}$. Après calculs, on trouve :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \chi}{\partial \theta} = 0 \\ \frac{\partial \chi}{\partial \Omega_x} = 0 \\ \frac{\partial \chi}{\partial \Omega_y} = 0 \end{array} \right\} \Leftrightarrow \left\{ \begin{array}{l} \theta(\tau) = \frac{\overline{(r_q^y(t)\Delta X(t,t+\tau) - r_q^x(t)\Delta X(t,t+\tau)) - (r_q^x(t)\Delta Y(t,t+\tau) - r_q^y(t)\Delta Y(t,t+\tau))}}{\overline{(r_q^x(t)^2 - r_q^y(t)^2) + (r_q^y(t)^2 - r_q^x(t)^2)}} \\ \Omega_x = \overline{r_q^x(t)} + \frac{\overline{\Delta Y(t,t+\tau)}}{\theta(\tau)} \\ \Omega_y = \overline{r_q^y(t)} - \frac{\overline{\Delta X(t,t+\tau)}}{\theta(\tau)} \end{array} \right. \quad (3.15)$$

La notation $\overline{\dots}$ indique la moyenne sur l'ensemble des particules aux temps t et $\Delta X(t, t+\tau) = r_q^x(t+\tau) - r_q^x(t)$ et $\Delta Y(t, t+\tau) = r_q^y(t+\tau) - r_q^y(t)$.

En pratique, nous choisissons une liste de *lagtimes* τ , puis nous calculons à un τ donné l'angle de rotation et le centre de rotation selon les équations (3.15). Une fois le centre et l'angle de rotation calculés, nous retranchons le déplacement généré par la rotation aux déplacements du point \mathbf{r}_q entre t et $t+\tau$. Cela donne :

$$\Delta X(t, t+\tau)' = \Delta X(t, t+\tau) - f_{\theta(\tau), \vec{\Omega}}(r_q^x(t)), \quad (3.16)$$

$$\Delta Y(t, t+\tau)' = \Delta Y(t, t+\tau) - f_{\theta(\tau), \vec{\Omega}}(r_q^y(t)). \quad (3.17)$$

On représente le déplacement moyen des disques en fonction du *lagtime* τ défini comme $\sqrt{\Delta'^2(\tau)}$ sur la figure (3.14-a) relative aux disques ISO, et sur la figure (3.14-b) pour les disques SPP.

ISO. Partant de l'état liquide (courbe rouge) la pente mesurée est proche de 1/2. On en déduit un comportement diffusif. En augmentant progressivement la fraction surfacique, la dynamique devient de plus en plus sous-diffusive, jusqu'à développer un plateau pour $\Phi > 0.71$. Un plateau signifie que les disques restent piégés dans leur cage et n'en sortent pas.

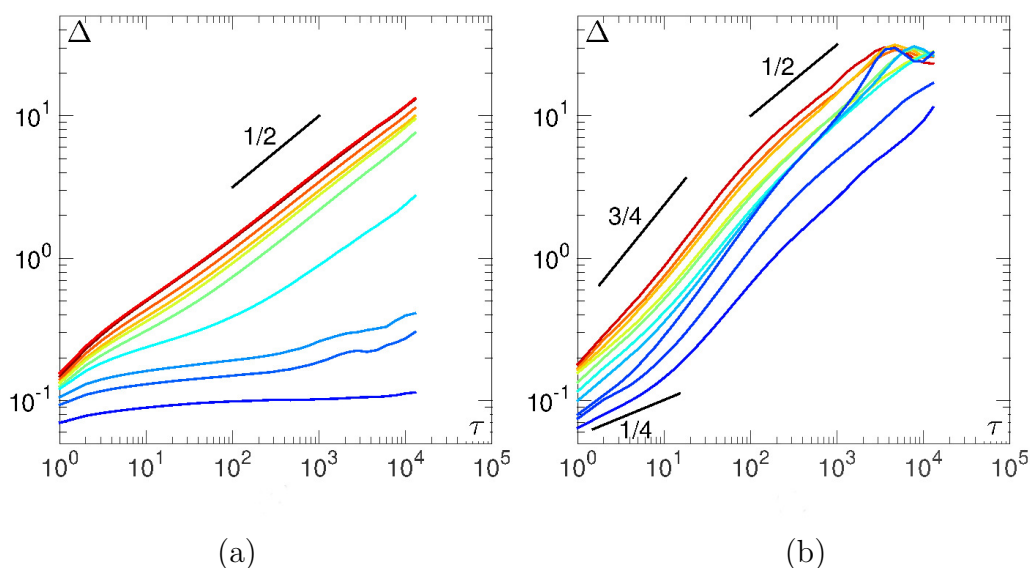


FIGURE 3.14 – **Déplacements moyen $\Delta' = \sqrt{\Delta'^2(\tau)}$ des disques en fonction de Φ .** (a) : pour les ISO. (b) : pour les disques SPP. Le code couleur est celui donné dans le tableau 3.1.

SPP. A tout Φ , la pente est supérieure à $1/2$ pour des temps $\tau < 10^2$: la dynamique est super-diffusive. Au-delà de ces temps, le régime est essentiellement diffusif. Par ailleurs, l'amplitude des MSD décroît avec Φ . Ceci peut s'expliquer par le fait que le nombre de disques qui participent aux mouvements diminuent.

Le comportement des MSD, ainsi que notre vision statique de coexistence entre deux phases suggèrent trois scénarios possibles :

1. Soit les cristallites sont essentiellement statiques et seules les particules dans les régions moins denses participent au régime superdiffusif.
2. Soit toutes les particules participent aux mouvements. Ce scénario se décline à nouveau en deux possibilités :
 - 2.1 Les cristallites sont advectées par le liquide mais conservent leur quasi intégrité (en terme des particules qui les constituent).
 - 2.2 Les cristallites ont une durée de vie relativement courte. Ainsi au cours du temps tous les disques participent aux mouvements à parts égales.

3.5.3 Relaxation de la structure

La relaxation de la structure est caractérisée par le facteur de structure dynamique $F(\mathbf{k}, t)$, où \mathbf{k} est un vecteur d'onde de l'espace réciproque. Il mesure l'auto-corrélation des fluctuations de densité au cours du temps :

$$F(\mathbf{k}, t) := \sum_{i,j} e^{i[\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_j(0)] \cdot \mathbf{k}} \quad (3.18)$$

Ce facteur nous renseigne sur le temps au bout duquel la structure du système décorrèle. La somme, qui fait intervenir les paires de particules (i, j) , peut se réécrire en deux sommes, dont l'une ne fait intervenir qu'un seul indice i . Cette partie de F est appelée la partie "self", et considère la relaxation d'une particule indépendamment des autres. Elle s'exprime comme ceci :

$$F_s(\mathbf{k}, t) := \sum_i e^{i[\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(0)] \cdot \mathbf{k}} \quad (3.19)$$

De plus, on définit le facteur Q qui s'exprime comme

$$Q(a, \tau) = \frac{1}{N} \sum_p \exp\left(\frac{-\Delta_p^2(\tau)}{a}\right),$$

avec Δ_p^2 le MSD d'une particule p . Q mesure le déplacement des disques sur un temps τ par rapport à une échelle de longueur a . C'est une mesure alternative à F_s et s'avère plus facile à implémenter pour notre étude, dans la mesure où Q fait directement intervenir le MSD des disques calculé préalablement. Précisons aussi que ces deux quantités ont déjà été étudiées et comparées dans une étude de milieu granulaire (Réf. [49]) et qu'elles s'interprètent de façon identique.

Par construction, $Q(a, \tau)$ a la propriété d'être compris entre 0 et 1. La valeur 1 signifie que le système est semblable à lui-même, en revanche une valeur de 0 signifie que le système a décorréolé et perd la mémoire de ce qu'il était.

Les figures (3.15-a) et (3.15-b) représentent la fonction $Q(a = 1, \tau)$, mesurée respectivement pour les disques ISO et SPP. L'échelle de longueur est fixée à $a = 1$ diamètre de disque. La courbe en pointillé sur la figure (3.15-b) sera explicitée par la suite.

ISO. Pour les fractions surfaciques allant de 0.40 à 0.68, c'est-à-dire pour les courbes allant du rouge au vert, on observe que Q commence à 1 pour $\tau \rightarrow 0$, et tend vers 0 pour des $\tau \rightarrow \infty$. Tous les disques se sont donc déplacés de plus de leur diamètre et le système a décorréolé. La courbe bleue claire, relative à une $\Phi = 0.71$ décorrèle plus lentement. Les courbes à partir du bleu, donc pour des $\Phi > 0.71$, montrent que Q sature à une valeur finie proche de 1 à tout τ . La structure se maintient donc au moins durant tout le temps de l'expérience.

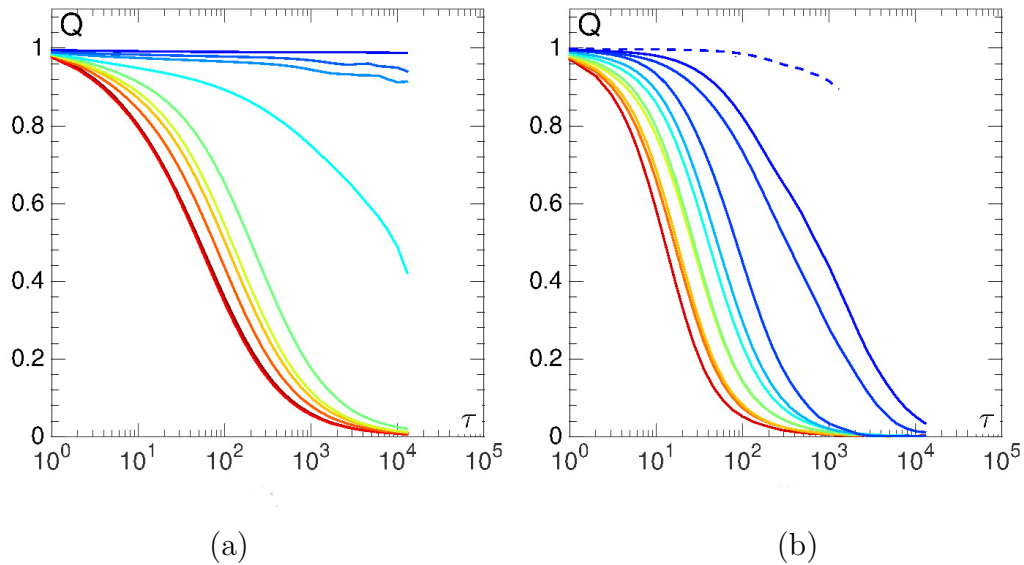


FIGURE 3.15 – **Relaxation de la structure en fonction de Φ** (a) : $Q(a = 1, \tau)$ pour les ISO. (b) : De même pour les disques SPP. La droite en pointillé est la mesure de la relaxation de la structure à $\Phi = 0.84$, pour un groupe de disques SPP au sein d’un amas ordonné dont les déplacements sont pris dans le référentiel du centre de masse du groupe de disques. Le code couleur est celui donné dans le tableau 3.1.

SPP. Pour tout Φ , on observe que Q décroît vers zéro. Pour $\Phi < 0.71$, la relaxation est dix fois plus rapide que pour les ISO. Pour $\Phi > 0.71$, la relaxation se fait sur des temps comparables à ceux du liquide d’ISO avant la cristallisation. Dans tous les cas $Q \rightarrow 0$. Or, si les particules dans les cristallites étaient restées localisées à leur position d’origine en tout temps, le facteur Q_p pour ces particules serait proche de 1, tandis que les disques du liquide auraient un Q qui tendrait vers 0, et la moyenne sur l’ensemble des particules devrait faire tendre Q vers une constante non nulle. Ceci indique que toutes les particules bougent. On peut donc éliminer l’image d’une coexistence “statique” (réf. 3.5.2).

Mesure du temps de relaxation

On mesure le temps de relaxation de la structure en définissant τ_α tel que $Q(a = 1, \tau_\alpha) = 0.5$, soit le temps au bout duquel 50% de la structure a décorrélé.

Sur la figure (3.16-b) on représente τ_α en fonction de Φ par des pastilles circulaires pour les ISO et des triangles pour les SPP. La courbe pour les SPP est toujours inférieure à celle des ISO. Par ailleurs, on observe pour les ISO une divergence du temps de relaxation à la transition. Pour les SPP, le temps de relaxation croît, mais

ne diverge pas. Le τ_α des SPP est du même ordre de grandeur que celui des ISO, avant la divergence.

On en conclut que la structure des SPP décorrèle plus vite que celle des ISO en tout Φ . Du point de vue de la relaxation structurale, le système de SPP est un liquide à toutes les fractions surfaciques explorées.

Reste à savoir si les cristallites sont uniquement advectées par la phase liquide ou si les cristallites ont intrinsèquement une dynamique rapide.

Pour répondre à cette question, intéressons-nous à la courbe en pointillé de la figure (3.15-b).

Nous avons cherché des disques dans un amas de SPP qui sont restés voisins (au sens de Delaunay) le plus longtemps possible. Une fois ces disques trouvés, nous avons mesuré le facteur de décorrélation Q de ces disques dans le référentiel de leur centre de masse. D'une part, la difficulté à trouver des disques qui sont restés proches sur une longue période indique que les cristallites formées ne tiennent pas. D'autre part, même lorsqu'elles se maintiennent (comme ça été le cas pour celles utilisées pour la courbe en pointillé), leur structure se décorrèle sur des temps plus longs que l'ensemble des SPP, mais sur des temps plus courts comparés à celui des ISO à ce même Φ . Ceci laisse penser que la phase cristalline n'est pas stable et que l'on ne peut pas parler de coexistence de phases.

3.5.4 Fonction de corrélation à quatre points

Définition.

$Q(a, \tau)$ nous renseigne sur le temps au bout duquel la structure décorrèle. Mais comment la décorrélation s'organise-t-elle spatialement sur l'échelle de temps τ_α ? Pour répondre à cette question, nous nous inspirons de mesures couramment utilisées pour l'étude des liquides surfondus où l'on définit des fonctions de corrélation à quatre points. Ces fonctions sondent les échelles de longueurs sur lesquelles la dynamique au temps τ des particules est corrélée. En effet, on cherche à savoir si les particules s'organisent collectivement entre elles lors de la relaxation. La fonction de corrélation à quatre points s'écrit :

$$G_4(\mathbf{r}, t) = \left\langle \frac{1}{V} \int d\mathbf{r}' \delta\rho(\mathbf{r}', 0) \delta\rho(\mathbf{r}', t) \delta\rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}, 0) \delta\rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}, t) \right\rangle - \left\langle \frac{1}{V} \int d\mathbf{r}' \delta\rho(\mathbf{r}', 0) \delta\rho(\mathbf{r}', t) \right\rangle \left\langle \frac{1}{V} \int d\mathbf{r}' \delta\rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}, 0) \delta\rho(\mathbf{r}' + \mathbf{r}, t) \right\rangle$$

La dénomination "4 points" vient du fait que l'on regarde deux points en espace (\mathbf{r}' et $\mathbf{r} + \mathbf{r}'$) et en temps (0 et t). La fonction G_4 mesure la probabilité que deux fluctuations de densité situées aux points $\mathbf{r} + \mathbf{r}'$ et \mathbf{r}' à l'instant $t = 0$ se décorèlent toutes les

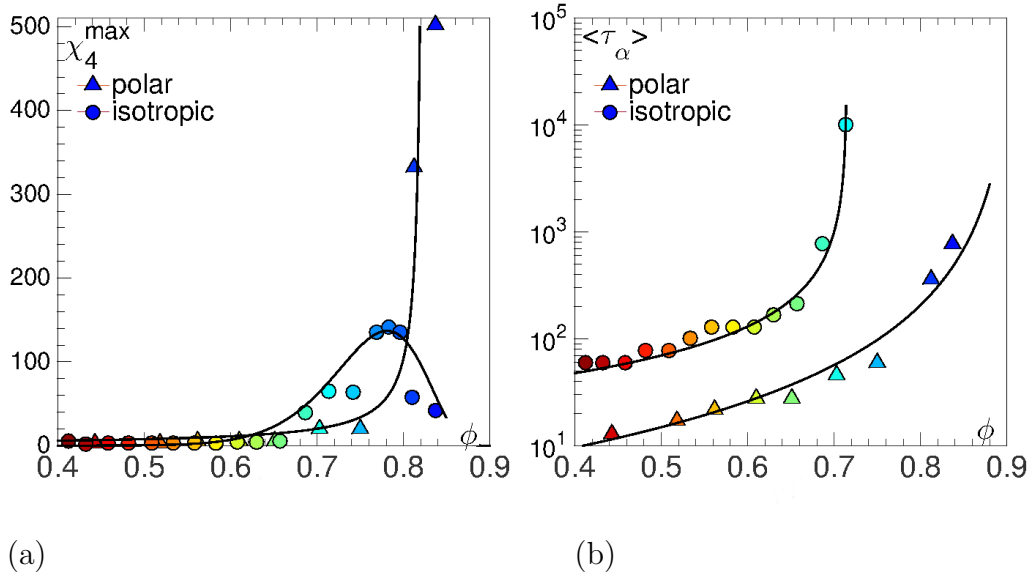


FIGURE 3.16 – **Hétérogénéités dynamiques en fonction de Φ .** (a) : Mesure du maximum ξ_4 . (b) : Temps de relaxation de la structure défini comme $Q(a = 1, \tau = \tau_\alpha) = 0.5$. Pour les deux figures, les ronds correspondent à une expérience de disques ISO, et les triangles de disques polaires.

deux sur un temps t . Pour estimer la taille des domaines qui se décorrèlent ou la longueur de corrélation dynamique qui caractérise les hétérogénéités de dynamique, nous intégrons $G_4(\mathbf{r}, t)$ sur l'espace, $\chi_4(t) = \int d\mathbf{r} G_4(\mathbf{r}, t)$. $\chi_4(t)$ se réécrit comme $\chi_4(t) = N \text{var}(C(t))$, où $C(t) = \frac{1}{V} \int d\mathbf{r} \delta\rho(\mathbf{r}, t) \delta\rho(\mathbf{r}, 0)$. En faisant le lien avec les transitions de phases en thermodynamique, $C(t)$ joue le rôle du paramètre d'ordre et $\chi_4(t)$ celui d'une susceptibilité dynamique.

En pratique.

Nous définissons

$$\chi_4(a, \tau) = N \text{var} \left(\frac{1}{N} \sum_p \exp \left[-\frac{(\mathbf{r}_p(t + \tau) - \mathbf{r}_p(t))^2}{a^2} \right] \right),$$

puis nous relevons la valeur maximale de $\chi_4(a, \tau)$ obtenue pour $\tau \sim \tau_\alpha$.

On représente sur la figure (3.16-a) $\max(\chi_4(a, \tau_\alpha))$ en fonction de Φ où la courbe des ISO est indiquée par des cercles et la courbe des SPP par des triangles.

ISO. La susceptibilité dynamique est faible dans la partie liquide, puis augmente et développe un pic proche de 0.76 et enfin redescend vers 0 à plus haut Φ . Nous faisons le parallèle entre ce pic dans la susceptibilité dynamique et la divergence du temps de relaxation τ_α et on en conclut qu'une dynamique hétérogène accompagne la transition de cristallisation pour les disques ISO.

SPP. La susceptibilité prend des valeurs significativement plus élevées et surtout croît de façon monotone avec Φ . Cette croissance de la susceptibilité à haut Φ , indique que la taille des objets qui se décorrèlent augmente. Un parallèle peut être fait avec la susceptibilité χ_6 , pour laquelle nous avons suggéré que de fortes variations impliquaient nécessairement des changements spontanés et brutaux de domaines de particules.

3.5.5 Conclusions sur la dynamique

Les disques isotropes (ISO) montrent un changement brutal dans leur dynamique en fonction de Φ . Dans l'état liquide, les disques diffusent et la structure décorrèle. Puis, passés à un état solide cristallin, les disques restent localisés et vibrent à leur position d'origine : la structure se maintient. La transition structurelle s'accompagne d'une transition dynamique. Les disques isotropes semblent se comporter à bien des égards comme des disques durs d'équilibre.

Les disques polaires actifs (SPP) ont une dynamique super-diffusive à tout Φ sur une large gamme de temps. L'amplitude de leur MSD décroît, mais le comportement est identique à tout Φ . Par ailleurs, la structure se décorrèle à tout Φ : tous les disques bougent et participent au mouvement. On note une croissance très importante de la susceptibilité dynamique qui semble diverger à hautes fractions surfaciques ($\Phi \sim 0.83$). Ceci pourrait signaler l'approche d'une transition dynamique d'une autre nature que la cristallisation usuelle.

Nous pouvons supposer à l'issue de l'étude sur la structure statique que les SPP présentaient une coexistence de phases entre une phase cristalline et une phase liquide. Cependant, l'étude de la dynamique exclut ce scénario de coexistence de phases. En effet, les régions cristallines ne tiennent pas, nous n'observons qu'une seule phase très intermittente : un liquide de clusters, dans lequel les disques changent sans cesse d'états. Quelles sont ses propriétés ? Comment les clusters s'organisent-ils ? Comment réagissent-ils ? C'est ce que nous allons étudier dans la troisième et dernière partie de ce chapitre.

3.6 Vers un liquide de clusters

Les SPP forment donc une phase composée d'amas ordonnés qui se réorganisent sans cesse, donnant lieu à une dynamique spatio-temporellement intermittente, jusqu'à un Φ au moins égal à 0.84. Le but de cette partie sera de préciser ce que l'on signifie par l'intermittence. Pour cela nous nous concentrerons sur le comportement statique et dynamique des amas de SPP ordonnés en fonction de Φ . Nous verrons d'abord comment les définir, puis nous verrons comment leur nombre évolue au cours du

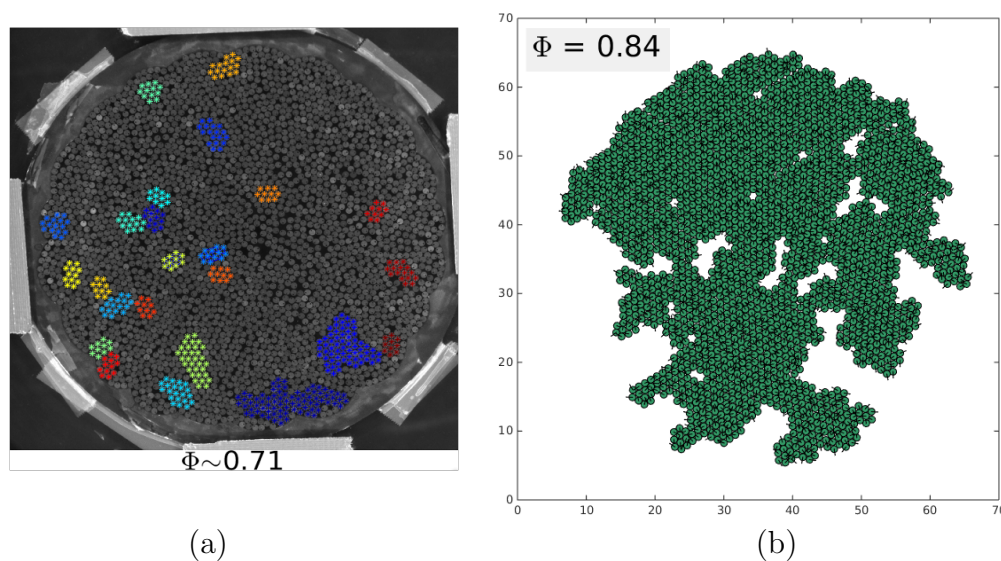


FIGURE 3.17 – **Clusters.** (a) : Photo de l’expérience sur laquelle figurent des clusters détectés. (b) : cluster de particules polaires identifié au cours de l’expérience à $\Phi = 0.84$. On remarque la forme non circulaire des clusters.

temps et comment ils se distribuent en fonction de leur taille. Enfin nous tenterons de quantifier la cinétique de cette phase, c’est-à-dire d’estimer les processus qui maintiennent un équilibre stationnaire intermittent.

3.6.1 Protocole et définition des clusters

L’ensemble des résultats exposés dans cette partie correspond à des expériences réalisées à haute densité avec des disques SPP, dont les paramètres sont résumés dans le tableau (3.2).

La phénoménologie de la formation de clusters se comprend de la façon suivante : la formation des clusters est conditionnée d’une part par la persistance des particules, et d’autre part par la fraction surfacique. Des particules rentrent en collision, la

N_{SPP}	2427	2620	2787	2998	2998	3079
Φ	0.65	0.71	0.75	0.81	0.81	0.84

TABLE 3.2 – **Caractéristiques des expériences réalisées avec des SPP.** Ces expériences vont nous servir à caractériser la phase de haute densité. Deux points figurent à 2998 particules SPP réalisées à deux jours d’intervalle. Le temps d’équilibration est fixé à 10 minutes. De même pour le temps d’acquisition. La fréquence d’acquisition est 25 Hz.

dynamique persistante de la direction induit les particules à rester en contact. Les particules relaxent leur direction au bout d'un temps de relaxation τ_r . Des clusters peuvent se former lorsque d'autres particules joignent les particules précédentes sur un temps $t < \tau_r$.

Définition des clusters

Nous souhaitons détecter des clusters de disques denses et compacts. Pour cela nous nous sommes fixés le critère suivant :

Si un disque a 6 voisins à une distance comprise entre 0.9 et 1.1 diamètre de disque, alors les 7 disques (6 + 1) sont considérés comme dans le même cluster cristallin.

En pratique.

Nous avons écrit un code de *clustering* dans lequel nous faisons la liste des N labels des disques $(\alpha_1, \dots, \alpha_N)$ intervenant dans la région d'intérêt (ROI). Nous choisissons au hasard un disque, par exemple le premier de la liste α_1 . Nous vérifions s'il vérifie le test de *clustering*.

1. Si le test est vérifié, nous initialisons un premier cluster labellisé i_1 dans lequel nous incluons les 7 disques (α_1 et ses 6 voisins). Nous passons ensuite à α_k , voisin de α_1 . Si α_k vérifie à nouveau le test, ses voisins sont ajoutés au cluster i_1 .
2. Si le test n'est pas vérifié pour α_1 , aucun label de cluster n'est créé. Et nous itérons à α_k . Dès qu'un disque vérifie le test, un premier cluster est créé.

L'ensemble des disques est parcouru une seule fois par une boucle. Il se peut que l'on considère un disque qui vérifie le test mais dont ses voisins n'appartiennent à aucun cluster. Nous créons alors provisoirement un deuxième cluster i_2 . Si l'intersection entre les disques qui constituent le cluster i_1 et ceux constituant i_2 est vide, le cluster i_2 est maintenu, sinon, tous les disques de i_2 sont transférés vers i_1 .

3.6.2 Apparition des premiers clusters, tailles des clusters et seuil de percolation

Une première quantité intéressante à regarder est la fraction $\langle n/N \rangle_t$ de disques dans le plus gros cluster, moyenné au cours du temps en fonction de Φ , avec n le nombre de particules dans le cluster au temps t . Celle-ci nous renseigne d'une part sur la fraction surfacique à partir de laquelle nous observons les premiers clusters importants et d'autre part nous permet de fixer un seuil de percolation défini comme la fraction surfacique à partir de laquelle le cluster le plus gros rassemble la majorité des particules.

Sur la figure (3.18-a) on observe que des clusters de tailles très faibles peuvent apparaître en-deçà de $\Phi \sim 0.71$. On note une première transition où la courbe commence à croître pour $\Phi \sim 0.71$. A $\Phi \sim 0.81$ on relève qu'en moyenne le plus gros cluster agrège presque 40% des disques, ce qui fait penser à l'approche d'une transition de percolation.

Distribution de la taille des clusters

La distribution des tailles (s , en nombre de disques) représentée sur la figure (3.18-b) est mesurée à partir de l'ensemble des clusters intervenant à tous les temps. Les clusters de taille inférieure à 10 disques ne sont pas comptabilisés, le but étant d'estimer la fraction surfacique à laquelle apparaisse des clusters de tailles significatives.

En représentation log-log on s'aperçoit que la distribution est exponentielle à bas Φ , suit ensuite une loi du type $P(s) = s^{-\alpha} \times \exp(-s/s^*)$ avec $\alpha = 2$ et où s^* croît avec Φ . Pour $\Phi > 0.80$ on observe une bosse localisée vers $s > 10^3$ qui témoigne de la présence d'un cluster de la taille du système qui a agrégé la majorité des disques. Ce comportement des distributions de tailles confirme la présence d'une transition de percolation vers $\Phi \sim 0.80$. La valeur exacte du seuil ne peut évidemment pas être déterminée avec davantage de précision, étant donnés les effets de taille finie.

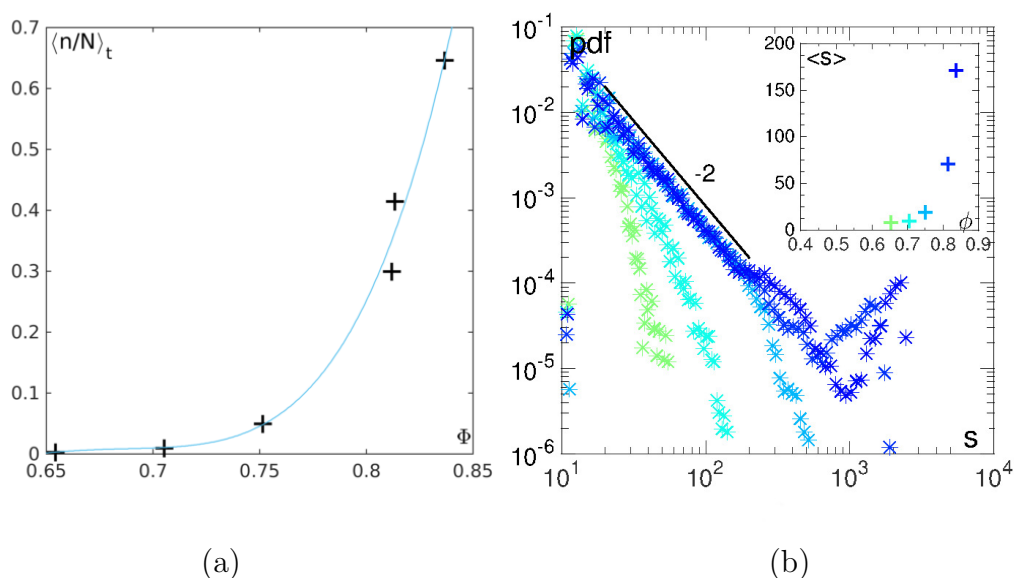


FIGURE 3.18 – **Fraction de particules dans le plus gros cluster.** (a) : La courbe bleue est un ajustement des points. On voit que les premiers clusters apparaissent vers $\Phi \sim 0.72$. (b) : Distributions des tailles des clusters en fonction de Φ

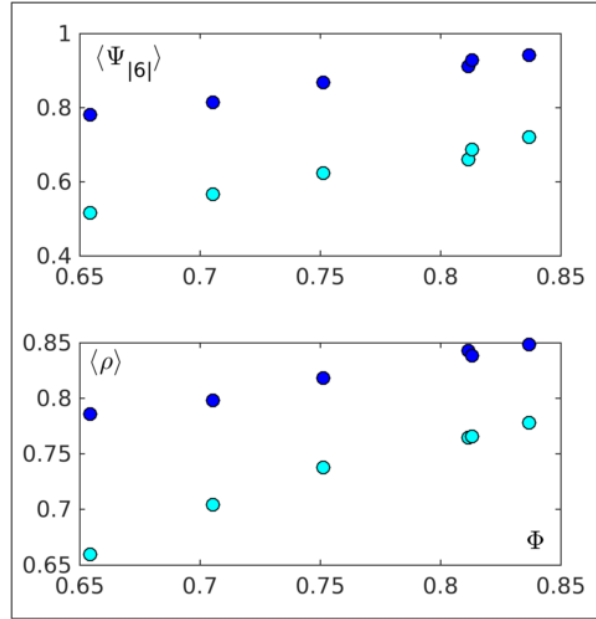


FIGURE 3.19 – **Densité locale et ordre hexatique local dans les clusters.** Mesure de la moyenne de la densité locale ρ et du champ $\Psi_{||6||}$ représentées par la couleur bleue foncée à l'intérieur des clusters et par la couleur bleue claire à l'extérieur des clusters.

3.6.3 Forme et structure des clusters

Clusters denses et cristallins

En haut de la figure (3.19), nous représentons la valeur moyenne du champ local de densité $\langle \rho \rangle$ en fonction de Φ , pour les disques des clusters en bleu foncé, et pour les disques en dehors des clusters en bleu clair. Sur la figure du bas, le même code couleur est utilisé pour représenter $\langle \Psi_{||6||} \rangle$ en fonction de Φ .

Nous vérifions que les moyennes de ces deux quantités sont toujours plus élevées pour les disques dans les clusters que pour ceux en dehors. Nous observons aussi que ces moyennes augmentent avec Φ . Donc lorsque le système entier se densifie, les deux états se densifient aussi et se structurent.

Pour les particules au sein des clusters, la croissance de l'ordre hexagonal est induite par celle de la densité : les particules à l'intérieur des clusters sont de plus en plus denses et forment de meilleures structures locales hexagonales.

Pour les particules en-dehors des clusters, la place laissée aux disques n'ayant pas 6 voisins diminue sous l'effet de l'augmentation de la densité globale et donc leur densité locale augmente. La croissance du champ $\Psi_{||6||}$ indique que la proportion

des disques ne vérifiant pas le critère de distance mais formant de bonnes structures hexagonales augmente avec Φ .

Géométrie des clusters

Comme en atteste la figure (3.17-b), un cluster peut avoir une forme peut éloignée de celle d'un cercle. Pour caractériser une telle forme, nous mesurons pour un grand nombre de clusters, le rayon de gyration défini pour un cluster C , comme $R_g^2(C) = \frac{1}{n_C} \sum_{i \in C} |\vec{r}_i - \vec{r}_g|^2$, où la somme est réalisée sur les particules i appartenant au cluster C de centre \vec{r}_g , et nous mesurons la distance maximale bout-à-bout $l = \max |\vec{r}_i - \vec{r}_j|_{[i,j] \in C}$ (Réf. [50, 51]). Sur la figure (3.20-a), nous représentons pour tous les Φ le nombre de disques dans le cluster (N) en fonction de son rayon de gyration (R_g), et sur la figure (3.20-b) nous représentons N en fonction de la distance bout-à-bout (l). Les droites en pointillées sur les deux figures ont une pente 2.

L'échelle des figures est en log-log. A tout Φ les distributions peuvent être ajustées par des droites, cela témoigne d'un comportement en loi de puissance. On a alors $N \sim R_g^{d_R}$ et $N \sim l^{d_l}$, avec d_R et d_l les exposants fractaux. Dans le tableau (3.3) nous présentons les valeurs mesurées aux différents Φ . Nous constatons que $d_R \neq d_l < d = 2$, ceci témoigne d'une légère fractalité dans la forme des clusters, mais leur écart à 2 est faible, cela signifie que les clusters ont une forme globalement circulaire.

3.6.4 Dynamique de la phase "liquide de clusters"

Nombre de clusters et fractions de particules dans l'état cluster

L'évolution du nombre de clusters au cours du temps présenté sur la figure (3.21-a) est stationnaire, mais fluctuante à tout Φ . Le nombre moyen de clusters croît dans un premier temps, puis diminue lorsque le système à percolé. Les fortes variations du nombre de clusters laissent penser que des échanges de particules entre les clusters ont lieu très fréquemment. Sur la figure (3.21-b), on représente l'évolution de la proportion de particules dans les clusters en fonction du temps pour les différents Φ . La dynamique est stationnaire et la proportion de particules dans les clusters croît avec Φ . Ceci signifie que pour un Φ donné nous n'observons pas de croissance d'une

Φ	0.65	0.75	0.8	0.81	0.83
d_l	1.26	1.78	1.61	1.97	1.78
d_R	1.64	1.73	1.79	1.71	1.83

TABLE 3.3 – Mesures des exposants fractaux en fonction de Φ

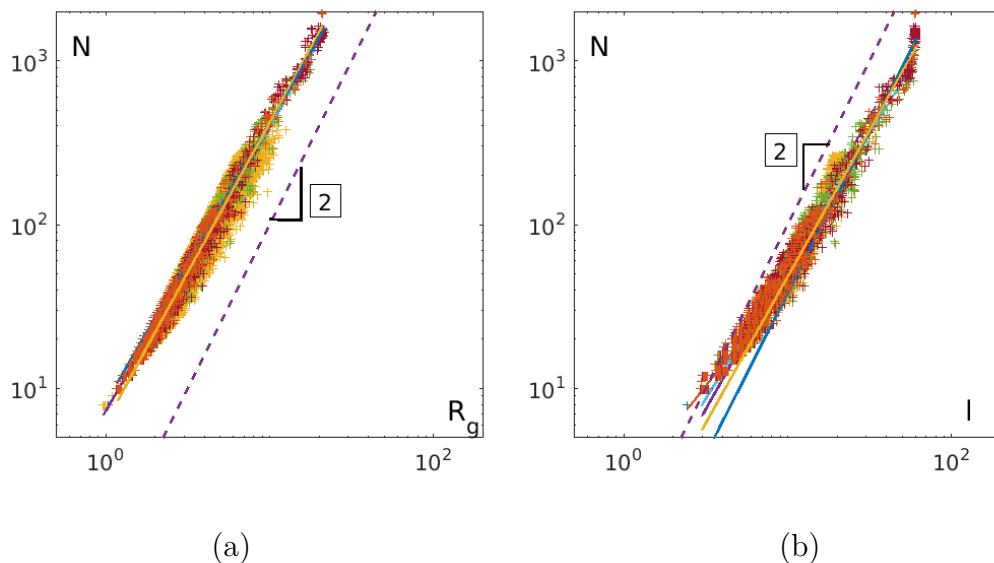


FIGURE 3.20 – **Forme géométrique des clusters** Distributions pour les différentes fractions surfaciques. Les points partageant une même couleur correspondent à la distribution pour un même Φ . (a) : Nombre de disques N dans les clusters en fonction du rayon de gyration R_g , les droites représentent les ajustements des distributions. (b) : Nombre de disques N dans les clusters en fonction de la distance maximale bout-à-bout l , les droites représentent les ajustements des distributions. Les droites en pointillés ont pour équations $N = R_g^2$ et $N = l^2$.

phase cristalline par rapport à la phase liquide. On peut se demander si ce sont toujours les mêmes disques qui composent les mêmes états, et le temps que passent les disques dans chaque état.

Pour répondre à ces questions, nous avons mesuré un temps de persistance τ_p des particules dans leurs états “cluster” ou “hors-cluster” pour des particules correctement suivies sur une seule fenêtre de temps égale à 1 000 unités de temps.

À une particule, nous attachons un vecteur (noté *etat*) en fonction du temps que l’on appelle *etat(t)*, avec *etat(t)* = 0 si la particule est en dehors de tout cluster au temps t , et *etat(t)* = 1 sinon. Puis, nous définissons le temps de persistance τ_p comme le nombre de pas de temps successifs durant lesquelles la particule est restée dans un état 0 ou 1. Nous établissons ensuite pour une particule deux histogrammes (h_0 et h_1) des temps de persistance dans chacun des deux états. Puis, ces deux histogrammes sont incrémentés dans une boucle sur l’ensemble des particules.

On représente sur la figure (3.21-c) la distribution des temps τ_p dans l’état “hors-cluster” et sur la figure (3.21-d) celle dans l’état “cluster”. En échelle log-log, les distributions des temps de persistance sont linéaires, et marquées par une coupure vers 1 000, correspondant à la fenêtre temporelle sur laquelle nous avons mesuré cette distribution. Les deux distributions montrent d’abord un régime linéaire aux

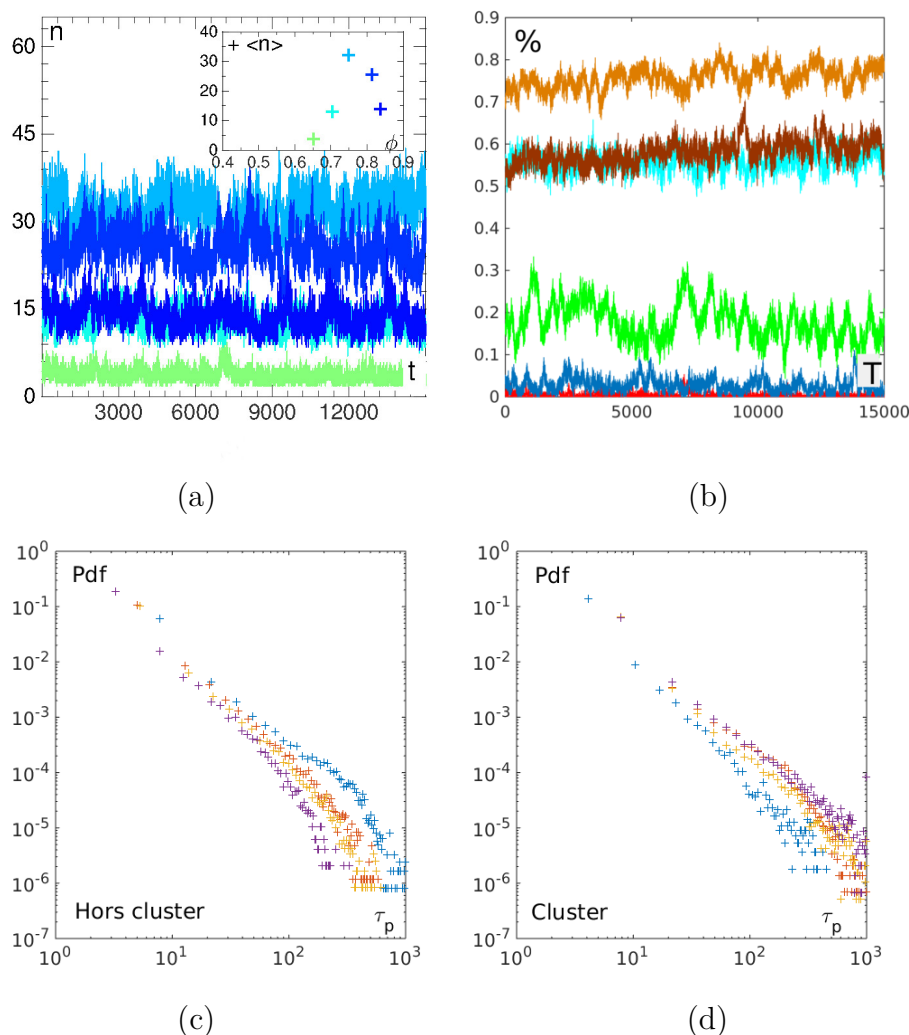


FIGURE 3.21 – **Propriétés dynamiques de la phase liquide de clusters en fonction de Φ .** (a) : Nombre de clusters en fonction du temps. La figure insérée indique le nombre moyen de clusters au cours du temps en fonction de la fraction surfacique. (b) : Proportion de particules dans les clusters en fonction du temps et à fraction surfacique différente. La courbe rouge est relative à $\Phi = 0.65$, en bleu foncé à $\Phi = 0.71$, en vert à $\Phi = 0.75$, en bleu clair à $\Phi = 0.81$, en marron à $\Phi = 0.81$, et en marron clair à $\Phi = 0.84$. (c) : Distributions des temps de persistance dans les régions hors-clusters. (d) : Distributions des temps de persistance dans les clusters. Les points bleus correspondent à un $\Phi = 0.75$, les points en orange et en jaune sont pour un $\Phi = 0.81$ et les points violets sont pour $\Phi = 0.84$.

bas temps, suivi d'une transition autour de $\tau_p \sim 10$ vers un deuxième régime linéaire. On constate que la queue des distributions diffère entre les deux distributions. Une partie linéaire indique que les particules peuvent rester durant n'importe quel temps dans un état. Par ailleurs, on note une symétrie dans l'évolution de ces distributions en fonction de Φ . La queue de la distribution dans l'état "hors-cluster" tend vers les plus faibles temps de persistance à mesure que Φ augmente, et dans le même temps, celle des temps de persistance dans l'état "cluster" tend vers les grands temps. Ceci signifie que plus le système se densifie plus les particules restent longtemps dans l'état "cluster".

Au vu de ces distributions, nous pouvons dire que les faibles temps de persistance dominant ($\tau_p \leq 10$). Bien que nous n'ayons pas de modèle sous-jacent pour expliquer la forme de ces distributions, nous pouvons supposer que si des échanges avaient lieu uniquement le long des parois des domaines ("clusters" et "hors-clusters"), nous nous attendrions à observer des pics de probabilité assez élevé sur des temps très longs, correspondant à des particules qui restent piégées dans leur état. Ce n'est pas le cas. En conséquence, la population qui compose les clusters changent rapidement à tout Φ , et les particules peuvent séjourner durant n'importe quel temps dans un état.

Ensemble, l'évolution du nombre de clusters et les distributions des temps de séjours dans chacun des deux états, confirment une absence de coexistence de phases. Les SPP sont dans une phase unique avec une dynamique spatio-temporelle intermittente.

À présent, nous aimerions pouvoir interpréter la distribution des tailles de clusters, et comprendre quels sont les mécanismes qui conduisent à cette phase stationnaire et fortement intermittente. Pour ceci, nous allons étudier la cinétique de la phase et tenter de suivre individuellement les clusters. Cela nous permettra de quantifier les échanges de disques entre deux pas de temps successifs et de mesurer les taux de réactions faisant passer d'un cluster de taille n_t au temps t à un cluster à n_{t+1} au temps $t + 1$ (Réf. [45]). La dynamique nous renseignerait aussi sur le temps de vie des clusters, et sur sa dépendance à la taille moyenne des clusters.

Dynamique individuelle des clusters

Le premier point à souligner est que le nombre de clusters n'est pas conservé. De plus, ce sont des objets ayant des tailles différentes, fluctuant fortement au cours du temps. Leur forme varie donc aussi et les suivre dans le temps par leur centre de masse est une mauvaise solution car leur centre effectue des sauts totalement décorrelés entre deux pas de temps successifs. Notre choix s'est donc porté sur un suivi à partir des labels des disques qui les composent.

La règle que nous avons fixée est la suivante :

Soit un cluster i au temps t , noté $C_{i,t}$. $C_{i,t}$ transmet son label i à un cluster $C_{j,t+1}$ au temps $t+1$, si $C_{i,t}$ donne au moins 50% des particules qui le composent et qu'il est le plus grand cluster parmi l'ensemble de ceux qui vérifient ce critère.

Le deuxième critère permet de “protéger” un cluster très massif vis-à-vis d'un moins massif. Prenons l'exemple d'un cluster $C_{1,t}$ de masse 7, qui interagit avec un cluster $C_{2,t}$ de masse 500, pour donner $C_{3,t+1}$. $C_{3,t+1}$ peut avoir 249 particules provenant de $C_{2,t}$ et les 7 particules de $C_{1,t}$. Ainsi le deuxième critère évite que $C_{3,t+1}$ prenne le label 1.

Deux possibilités pour qu'un cluster $C_{i,t}$ ne puisse transmettre son label et le perde :

- Soit il ne donne pas 50% de lui même à n'importe quel $C_{j,t+1}$: il s'est trop fragmenté.
- Soit il n'est pas assez massif par rapport aux autres prétendants $C_{k,t}$.

En pratique.

Nous avons une liste au temps t $C_{1,t}, \dots, C_{N,t}$, une liste au temps $t+1$ $C_{1,t+1}, \dots, C_{N',t+1}$, où N et N' n'ont pas de raison d'être égaux.

Nous construisons une matrice d'intersection :

$M_{ji} = \#(C_{i,t} \cap C_{j,t+1}) / \#C_{i,t}$, on a par construction $\sum_j M_{ji} \leq 1$. Où $\#$ signifie le cardinal.

Puis nous nous focalisons sur un j (donc un cluster du temps $t+1$) et nous parcourons tous les cluster i (du temps t) qui ont une intersection non vide avec lui. Si $M_{ij} < 0.5$, i ne transmettra pas son label, en revanche si $m_{ij} \geq 0.5$, il est nécessaire de comparer la masse de i avec tous les autres i' qui ont aussi une intersection non vide avec j . i doit donc satisfaire la condition suivante : $(M_{ij} \geq 0.5) \wedge (\text{Masse}(i) > \text{Masse}(i')), \forall i' / M_{ij} \geq 0.5$.

La gestion des labels se fait de la façon suivante : au temps 1 on assigne un label à tous les groupes présents. Puis l'on attribue de nouveaux labels au cours du temps au fur et à mesure de l'apparition de nouveaux clusters.

Tailles des clusters en fonction de leur temps de vie

On représente sur la figure (3.22-a) la distribution du temps de vie τ des clusters en fonction de leur taille moyenne au cours du temps $\langle N \rangle$. On représente cette distribution pour toutes les fractions surfaciques $\Phi \in [0.65, 0.75, 0.81, 0.81, 0.83]$. La droite en pointillé est une droite linéaire de pente 1.

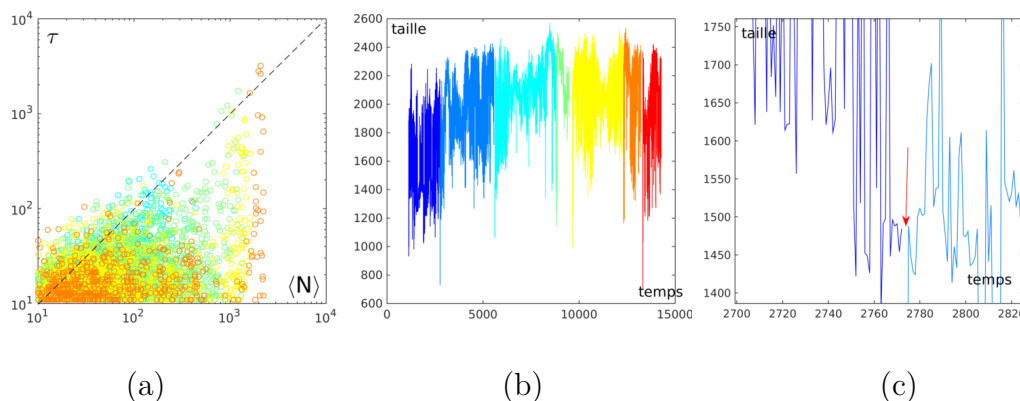


FIGURE 3.22 – **Résultats du tracking des clusters.** (a) : Distribution des tailles moyennes des clusters en fonction des temps de vie pour des $\Phi \in (0.65, 0.75, 0.81, 0.81, 0.83)$, la droite en pointillé représente une droite de pente 1. Le code couleur utilisé est bleu foncé, bleu claire, vert, jaune, orange pour des $\Phi \in (0.65, 0.75, 0.81, 0.81, 0.83)$. (b) : Évolution de la taille de 7 clusters en fonction du temps de label. Les deux premiers clusters portent les labels 4683 et 11583. (c) : Zoom à la jonction des courbes des deux premiers labels figurant sur la figure (b), la flèche rouge indique la discontinuité temporelle suggérant la perte de l'identité du premier cluster et l'attribution d'un nouveau label.

On constate d'abord que la distribution est fortement concentrée en bas à gauche de la figure, c'est-à-dire autour des clusters de petites tailles et des faibles temps de vie. Ceci signifie que l'on a une forte population de petits clusters qui vivent peu de temps.

De plus, on remarque une linéarité, en échelle log-log, entre le temps de vie maximal pour un $\langle N \rangle$ fixé et $\langle N \rangle$. On remarque aussi une distribution quasi-uniforme en-dessous de cette droite pour toutes tailles moyennes de clusters.

Ces observations montrent qu'un cluster de taille moyenne $\langle N \rangle$ peut vivre sur n'importe quel temps inférieur à celui donné par la droite $\tau = \langle N \rangle$.

Pour voir si ce résultat a du sens, nous avons regardé l'évolution temporelle du nombre de disques dans un cluster en fonction du temps pour l'ensemble des clusters de tailles moyennes supérieures à 10^3 . Parmi ces clusters, nous en avons repéré 7 dont l'évolution temporelle du nombre de disques ne se chevauchent pas au cours du temps (voir figure (3.22-b)). Chaque courbe correspondant à un cluster est représentée dans une couleur différente. Une trajectoire succède à une autre et ainsi de suite durant tout le temps de l'expérience sans quasi-discontinuité. Ceci semble indiquer que ces 7 clusters *a priori* différents pourraient en fait être le même cluster, et que le *tracking* sous-estime le temps vie des clusters. La mise en place du *tracking* est en fait très complexe du fait des ramifications dans le graphe temporel qui relie les labels de disques entre deux pas de temps. Le *tracking* proposé a un point de vue très microscopique en temps. Peut-être existe-t-il des méthodes de *tracking* avec un

point de vue plus global, qui assureraient d'une part qu'aucun groupe ne présente le même label au même pas de temps, et d'autre part qu'un cluster tel que celui représenté sur figure (3.22-b) soit perçu comme un unique cluster. Cependant, sur le plan de la physique, le résultat n'est pas totalement négatif : vues les fluctuations du nombre de particules au cours du temps, cela suggère qu'un cluster ayant agrégé une grande fraction de disques, de l'ordre de 1 000, est en proie à de nombreuses fragmentations et agrégations.

Ainsi, le *tracking* ne nous permet pas de mesurer les taux de réactions comme nous l'aurions souhaité. Pour cela nous allons procéder selon une autre méthode, qui ne nécessite pas de hiérarchiser les clusters.

3.6.5 Cinétique des clusters

Définition des processus

Ayant connaissance des disques qui composent les clusters à chaque pas de temps, nous avons fait le choix de nous intéresser à deux pas de temps successifs et de quantifier les échanges de particules entre les clusters du temps t et ceux du temps $t+1$. Pour cela, nous construisons une matrice où nous mettons une valeur binaire 0 ou 1 à la position (i, j) selon que l'intersection entre les clusters $C_j(t)$ et $C_i(t+1)$ est vide ou non. Puis l'on parcourt l'ensemble des lignes et des colonnes pour détecter les événements définis ci-dessous.

Morts et naissances de clusters.

Une **naissance** est définie comme un cluster du temps $t+1$ qui n'aurait aucune intersection avec les cluster du temps t . Inversement un événement de **mort** correspond à l'absence d'une intersection d'un cluster du temps t avec les clusters du temps $t+1$.

Échanges de particules entre les clusters et la phase désordonnée (hors-clusters) : adsorption et désorption.

Un cluster (C_t) au temps t ayant une seule intersection avec (C_{t+1}) et inversement un cluster (C_{t+1}) ayant une seule intersection avec (C_t), correspond à un processus d'échange de disques entre la région hors-cluster et le cluster. Ce type d'échange est appelé **adsorption** si la masse du cluster croît, **désorption** si la masse du cluster diminue, et **rien** si la masse reste à l'identique¹.

Processus d'agrégation et de fragmentation.

Une **agrégation** élémentaire est définie comme un événement qui implique trois

1. la définition n'est pas exacte puisque l'on pourrait avoir un échange de disques entre deux pas de temps et conserver la même masse, mais nous considérons que ce genre d'événements est peu probable

clusters : deux aux temps t et un au temps $t + 1$ ($C_{1,t}, C_{2,t}$, et $C_{3,t+1}$). On compte une agrégation lorsque $C_{1,t}$ et $C_{2,t}$ ont chacun une intersection non vide avec $C_{3,t+1}$.

Une **fragmentation** élémentaire est définie de façon similaire, mais en considérant un cluster au temps t qui se scinderait en deux clusters au temps $t + 1$.

Ces processus sont difficiles à quantifier car généralement des agrégations et des fragmentations surviennent en même temps et peuvent impliquer un grand nombre de clusters. Par exemple nous pourrions avoir un processus faisant intervenir quatre clusters ($C_{1,t}$ et $C_{2,t}$) et ($C_{3,t+1}$ et $C_{4,t+1}$), avec des intersections non vide entre $C_{1,t}$ et ($C_{3,t+1}$ et entre $C_{1,t}$ et $C_{4,t+1}$) et de même pour ($C_{2,t}$) avec ($C_{3,t+1}$ et $C_{4,t+1}$). Ainsi pour compter ce type d'événements nous incrémentons de 1 le nombre d'agrégations au cours du temps si un cluster au temps $t + 1$ a au moins deux intersections non vides avec deux clusters du temps t . Et de façon similaire nous comptons 1 pour une fragmentation si un cluster du temps t a une intersection non vide avec au moins deux clusters du temps $t + 1$.

Illustrons par l'exemple suivant comment compter les événements.

Considérons huit clusters $C_{j,t}$ du temps t , et huit clusters $C_{i,t+1}$ du temps $t + 1$. Construisons la matrice binaire $M(i, j)$ selon que le cluster $C_{i,t}$ a une intersection vide ou non avec $C_{j,t+1}$.

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Dans cet exemple, la colonne 1 n'a que des zéros ce qui signifierait que le cluster $C_{1,t}$ meurt. La ligne 2 n'a que des zéros, ce qui compte pour une naissance. La colonne 2 a exactement une intersection avec la ligne 1, et inversement : cet événement sera compté comme un processus d'échanges du type adsorption/désorption ou rien en fonction de comment varie sa masse. La ligne 3 a deux intersections non vides avec les colonnes 3 et 5, qui elles n'ont qu'une intersection avec une ligne, ainsi cet événement sera compté comme un processus d'agrégation, deux clusters du temps t se réunissant en partie en un cluster du temps $t + 1$. La fragmentation est illustrée par la colonne 4 qui a deux intersections non vides avec deux lignes qui n'ont d'intersection avec aucune autre colonne. Enfin, un événement faisant intervenir à la fois une agrégation et une fragmentation correspond au cas des colonnes 7 et 8 qui ont une intersection avec les lignes 7 et 8.

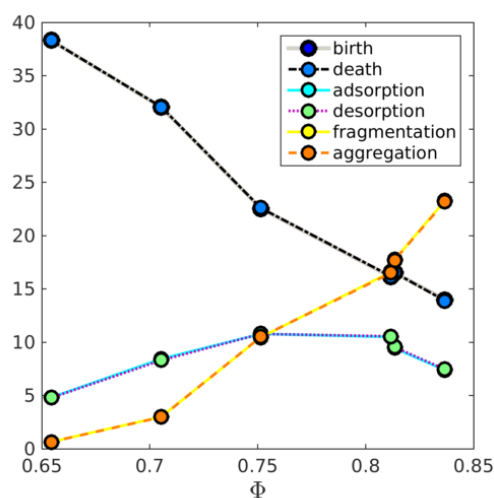


FIGURE 3.23 – **Proportions (en %)** d'événements par temps en fonction de Φ . L'échelle des ordonnées et des abscisses sont en linéaire. La courbe grise en ronds bleus représente les événements de type **naissances**, la courbe en pointillés noirs représente les **morts**, la bleue claire représente les **adsorptions**, celle en pointillés violets les **désorptions**, la courbe jaune en trait plein correspond aux **fragmentations** et on représente en pointillés oranges les **agrégations**

Proportions d'événements par unité de temps en fonction de Φ

Tout d'abord on voit que les résultats entre les sous-classes de processus ([morts,naissances]; [adsorptions,désorptions]; [agrégations,fragmentations]) sont quasi identiques à tout Φ , au point que les courbes se superposent. Il y a donc équilibre ou stationnarité classe par classe. A tout Φ les échanges de types adsorptions et désorptions sont minoritaires. Par ailleurs, les morts et les naissances dominant à bas Φ mais se font de plus en plus rares à mesure que Φ augmente. Dans le même temps, les fragmentations et les agrégations gagnent en proportion quand la fraction surfacique augmente.

Tant que la phase désordonnée est majoritaire ($\Phi \sim 0.63$), les naissances et les morts dominant. Ceci signifie que des fluctuations de densité sont capables de former des "clusters", mais du fait de l'absence d'un vrai potentiel attractif fort entre les disques, ceux-ci ne tiennent pas et disparaissent rapidement.

Vers $\Phi \sim 0.71$, la proportion de disques dans les deux états est quasiment similaire, et on note que la cinétique s'équilibre principalement entre les processus de (naissances, morts) et (agrégations, fragmentations). Cela indique que des fluctuations de densités sont encore importantes pour permettre la nucléation et la disparition de clusters. Mais l'état cluster étant plus important, les clusters ont une plus grande durée de vie et interagissent fortement entre eux.

A $\Phi > 0.81$, les morts et les naissances sont moindres et les événements qui dominent sont des agrégations et des fragmentations. La place laissée aux régions désordonnées est beaucoup plus faible. Les fluctuations pour former des clusters sont donc plus rares. Par ailleurs, un cluster percole dans tout le système à ces fractions surfaciques. Ceci montre que dans un tel régime on observe des excitations qui tendent fragmenter ce cluster, mais le manque d'espace qui s'offre aux morceaux fragmentés les amènent à se ré-agrégier.

On en conclut que la cinétique change sensiblement : à mesure que la fraction surfacique augmente, les processus d'agrégations et de fragmentations dominant de plus en plus. Dans tous les cas, la dynamique est très loin de celle d'une phase dense bien définie, qui n'échangerait que quelques particules avec la phase diluée à l'interface entre les deux phases.

On peut alors se demander quelle est la part de disques mise en jeu lors des différentes réactions.

Distributions du nombre de disques impliqués dans les événements en fonction de Φ

Le comptage du nombre de disques lors de chaque événement se fait de la manière suivante :

Naissances et morts.

Pour une mort ou pour une naissance, le comptage du nombre de disques se fait simplement en prenant la taille du cluster qui meurt ou qui naît.

Adsorptions et désorptions.

Le comptage du nombre de disques intervenants dans ces événements correspondent aux valeurs absolues des différences de masses entre (C_t) et (C_{t+1}) .

Fragmentations et agrégations.

Le nombre de disques que l'on considère dans une réaction de type agrégation/fragmentation est la valeur du nombre de particules communes entre les clusters aux temps t et $t + 1$. Par exemple, prenons deux clusters aux temps t $C_{1,t}$ et $C_{2,t}$ qui se sont agrégés en $C_{3,t+1}$. Pour cet événement nous prenons le vecteur $[\#(C_{1,t} \cap C_{3,t+1}); \#(C_{2,t} \cap C_{3,t+1})]$; ainsi au cours du temps on agrège tous ces vecteurs, et l'on calcule la distribution du nombre de particules dans chaque intersection.

Reprenons l'exemple présenté dans la section 3.6.5. En notant $m_{ij} = \#(C_{j,t} \cap C_{i,t+1})$, nous construisons l'histogramme des tailles des événements impliqués dans les agrégations : $h_a = [m_{33}, m_{35}, m_{67}, m_{68}]$. L'histogramme h_f , des tailles des événements impliqués dans les fragmentations est $h_f = [m_{44}, m_{54}, m_{67}, m_{78}]$.

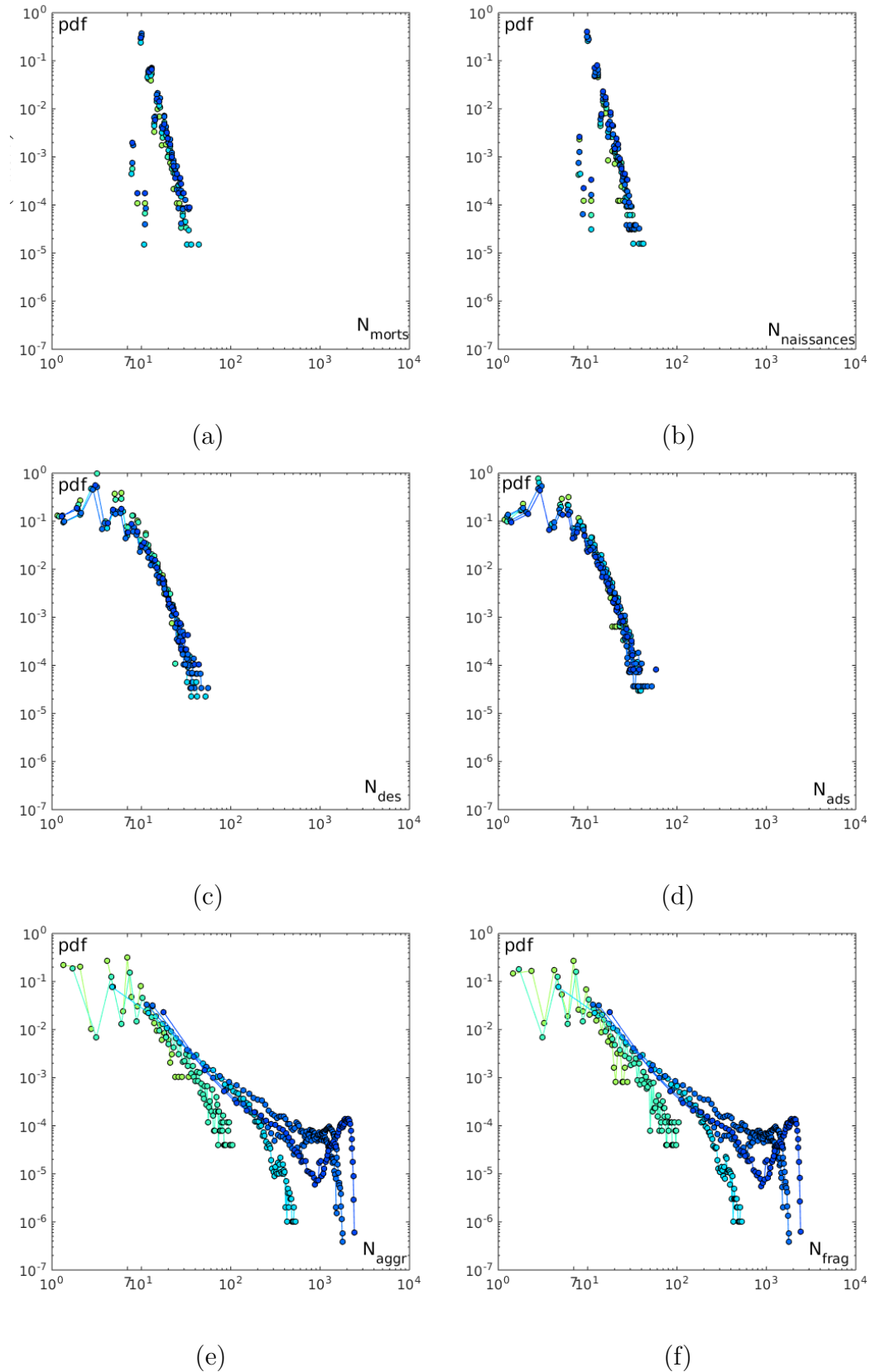


FIGURE 3.24 – Distributions du nombre de disques impliqués pour les différents processus en fonction de Φ . (a) : distributions du nombre de particules impliquées dans un processus de morts. (b) : Pour les naissances. (c) : Pour les désorptions. (d) : Pour les adsorptions. (e) : Pour les agrégations. (f) : Pour les fragmentations. La couleur des graphes va du vert clair au bleu foncé pour des $\phi \in (0.65, 0.71, 0.75, 0.81, 0.84)$

Résultats.

On représente les distributions en fonction de Φ sur la figure (3.24). Avant toute chose, précisons que la définition de nos clusters impose une quantification dans la taille des petits clusters. La taille minimale est de 7 et la taille qui suit sera de 10.

- Sur les figures (3.24-a) et (3.24-b) nous représentons les distributions des tailles de clusters impliqués dans des événements de types mort et naissance. On note de très fortes ressemblances entre ces deux distributions à n'importe quel Φ . Les distributions sont principalement piquées vers 7 et 10 à tout Φ et on remarque qu'elles ont un comportement en loi de puissance jusqu'à des clusters de quelques dizaines de disques qui peuvent apparaître et disparaître à tout instant.
- Sur les figures (3.24-c) et (3.24-d) nous représentons les distributions du nombre de particules impliquées dans les processus d'adsorptions et de désorptions. Comme précédemment, nous observons qu'elles se superposent à tout Φ . Elles sont principalement dominées par des objets de taille 3, équivalent à la différence entre 7 et 10. Cela indique la présence d'échanges fréquents impliquant 3 disques qui s'agrègeraient vers des clusters de taille 7 ou des clusters de taille 10 qui perdraient 3 disques. Cependant, on peut aussi avancer l'hypothèse que des effets de seuils dans la détection des clusters de petites taille impliquent que d'un instant à un autre nous observions des clusters de taille 7 ou 10.
- Sur les figures (3.24-e) et (3.24-f) nous représentons les distributions du nombre de particules impliquées dans les processus d'agrégations et de fragmentations. Ces distributions changent drastiquement avec la fraction surfacique. On remarque une quasi-similarité entre les distributions de ces deux processus. Ces distributions indiquent que les clusters interagissent à la fois par agrégations et par fragmentations. Des domaines de disques passent d'un cluster à un autre et sont perçus à la fois comme des domaines qui se fragmentent, puis qui se ré-agrègent comme illustré par l'exemple sur le comptage des événements (3.6.5). Par ailleurs, à haute fraction surfacique, nous observons que la forme de la distribution est semblable à celle des distributions des tailles des clusters (figure 3.18). On en déduit que les clusters impliqués dans les processus d'agrégations et de fragmentations sont représentatifs de l'ensemble des clusters.

Donc les principaux échanges de disques entre des domaines d'une taille similaire à celle du plus gros cluster sont causés par des fragmentations et des agrégations.

3.7 Conclusion sur la phase

Nous avons étudié expérimentalement la cristallisation des disques durs passifs (ISO) et celle des disques durs actifs (SPP). Pour cela, nous avons fait une série de mesures en partant de fractions surfaciques $\Phi = 0.40$, que nous avons augmentées progressivement, jusqu'à atteindre des fractions d'environ 0.84.

Les disques ISO se comportent comme des disques durs d'équilibre, cristallisant autour de $\Phi = 0.71$, avec une transition structurelle quasi-continue et une transition dynamique d'un état liquide diffusif à un état où les disques vibrent localement et restent piégés dans leur cage.

Pour les disques actifs, le scénario est très différent. Nous n'observons pas de cristal, même à des fractions surfacique de 0.83. Cependant, on note un changement de comportement dans la structure, où des clusters (des groupes de disques denses et compacts) apparaissent aussi vers $\Phi = 0.71$. Ceci implique qu'à courte distance, les disques s'organisent en réseau hexagonal dense et que l'ordre hexagonal grandit. La taille de ces objets augmente avec le temps, mais la population qui les compose est très changeante. Par ailleurs, la dynamique est superdiffusive à tout Φ , et toute la structure décorrèle, ce qui indique que les disques SPP forment un liquide de clusters. Nous n'observons donc pas de séparation de phase. Enfin en essayant de quantifier les échanges de disques intervenant entre les clusters, nous avons conclu que des clusters de grandes tailles, notamment ceux présents à haute fraction surfacique, sont le siège de fragmentations et d'agréations, responsables de la dynamique intermittente de la phase dense.

Dans le chapitre suivant nous traiterons des questions relatives à la fonte des cristaux. En effet, on peut se demander quels mécanismes génèrent la fragmentation des clusters. Nous essayerons par ailleurs de voir expérimentalement et numériquement jusqu'à quelle densité les disques durs polaires actifs (SPP) continuent à couler.

Chapitre 4

Défauts topologiques et stabilité du cristal

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent nous avons cherché à savoir si les disques polaires vibrés cristallisaient. Pour ce faire, nous avons progressivement augmenté la fraction surfacique de 0.3 jusqu'à 0.84 environ. Par ailleurs, sachant qu'en dimension deux le cristal d'équilibre présente deux ordres en translation et en orientation, nous avons mesuré les fonctions de corrélation de paires $g_2(r)$ et du paramètre d'ordre orientationnel $\Psi_{\parallel 6\parallel}$. Nous avons aussi regardé la dynamique, en mesurant le déplacement quadratique des disques et le facteur de décorrélation de la structure en fonction de la fraction surfacique. Nous avons conclu que les disques isotropes, qui présentent une dynamique passive, développent une transition de phase entre le liquide et le cristal proche de la fraction surfacique de 0.71. Concernant les disques polaires actifs, nous avons observé un total découplage entre la structure et la dynamique. Le système acquiert à haute fraction surfacique de l'ordre orientationnel et translationnel au sein d'agrégats de plus en plus denses, tandis que les particules continuent à avoir une dynamique super-diffusive. Les disques polaires forment des agrégats denses et compacts, coexistant avec des régions désordonnées. Ces agrégats se forment et se fragmentent sans cesse : les disques passent de façon intermittente d'un état ordonné à un état désordonné. Ces observations posent la question des mécanismes qui sont à l'origine de la fragmentation de ces agrégats.

A l'équilibre, ce qui génère la fonte des cristaux à deux dimensions est la prolifération de dislocations, un type de défauts topologiques qui détruisent le quasi-ordre translationnel de la phase cristalline. La théorie de Kosterlitz-Thouless-Halperin-Nelson-Young (KTHNY) évoquée dans le chapitre précédent, propose une théorie de fonte induite par ces défauts topologiques (Réf. [44, 35, 61, 84]). Le scénario

de cristallisation/de fonte des disques durs d'équilibre ne suit pas exactement celui prédit par la théorie KTHNY en ce qui concerne la nature de la transition de phase entre le liquide isotrope et la phase hexatique, qui a tout de même été observée (Réf. [6]). Il nous paraît donc judicieux de rappeler cette théorie et de voir comment les défauts topologiques engendrent la fonte d'un cristal d'équilibre.

Nous présenterons ensuite nos résultats expérimentaux concernant la statique et la dynamique des défauts topologiques, pour les disques isotropes et polaires. Dans un premier temps nous nous sommes intéressés aux défauts observés au cours des expériences décrites dans le chapitre précédent. Nous verrons en quoi ces défauts diffèrent entre les disques ISO et les disques SPP. Dans tous les cas, les bords en forme de fleur frustrent l'ordre cristallin et favorisent la formation de défauts. C'est pourquoi nous avons entrepris de nouvelles expériences à très haute fraction surfacique $\Phi \sim 0.89$, réalisées dans une forme hexagonale pour favoriser la stabilité du cristal de disques actifs.

4.2 L'ordre à deux dimensions

La dimension d'espace $d = 2$ présente un intérêt particulier dans l'étude des transitions de phases désordre-ordre. En effet, l'état ordonné ne s'établit pas à longue distance, on parle de quasi-ordre à longue distance. Peierls fut l'un des premiers à montrer que les fluctuations du champ de positions des particules divergiaient en dimension deux (Réf. [67]). Il en avait conclu que l'ordre ne pouvait s'y établir. Ce résultat est plus largement généralisé par le théorème de Mermin Wagner qui stipule qu'en dimension deux il n'est pas possible de briser une symétrie continue à température finie (Réf. [58]).

L'absence d'ordre à longue portée n'interdit pas la présence de transitions de phases. Des transitions de phases dites topologiques se manifestent en dimension deux et permettent le passage d'un état ordonné à quasi-longue distance à un état désordonné à la température de Kosterlitz Thouless T_{KT} .

4.2.1 Phénoménologie de la transition de Kosterlitz-Thouless

Dans la phase ordonnée de basse température, la fonction de corrélation qui mesure l'ordre dans le système suit une loi algébrique en tout point de la phase de la forme $G(\mathbf{r}) \propto 1/r^{\eta(T)}$, avec $\eta(T)$ un exposant non universel qui dépend de la température. Ceci est très particulier, dans la mesure où une décroissance algébrique ne s'observe généralement qu'au point critique d'une transition de phase continue.

La phase n'est pas ordonnée à longue portée en raison de l'excitation de modes collectifs : les modes de Goldstone. En effet, lorsqu'une symétrie continue est brisée

lors d'une transition de phase, des excitations collectives apparaissent. Par exemple, un liquide est invariant par rotation dans toutes les directions, tandis que le cristal correspond à un état moins symétrique dans lequel la position des atomes se déduisent par translation selon des directions discrètes. Les phonons correspondent aux excitations collectives associées à cette perte de symétrie. Or, en dimension deux, ces modes collectifs détruisent l'ordre à longue distance. Ceci se traduit par l'annulation du facteur de Debye Waller, $\exp -(2W)$, avec

$$W = \frac{k_B T}{2} \int_0^\Lambda \frac{d^d q}{(2\pi)^d} \frac{1}{\rho_s q^2} = \frac{k_B T \Lambda^{d-2}}{2\rho_s (d-2)} \quad (4.1)$$

où Λ est le vecteur d'onde de coupure donné par le rayon de la première zone de Brillouin. Le facteur de Debye Waller, mesure l'effet des fluctuations thermiques sur le carré de l'amplitude du paramètre d'ordre (Réf. [39]). En dimension deux, W diverge, ce qui a pour conséquence d'annuler le paramètre d'ordre et de n'obtenir qu'un ordre à quasi-longue distance.

Outre les modes de Goldstone, des défauts topologiques peuvent être excités. Kosterlitz et Thouless, récipiendaires du prix Nobel de physique 2016 pour ces travaux, ont montré que la prolifération de défauts topologiques à une certaine température est responsable d'une vraie transition de phase, qui fait passer l'ordre de quasi-longue distance à un ordre à courte distance dans la phase désordonnée. Il s'agit d'une vraie transition de phase marquée par une singularité dans l'énergie libre (Réf. [39]).

C'est pourquoi dans la phase de basse température, décrivant la phase ordonnée, deux excitations doivent être prises en compte : celles induites par les excitations collectives (modes de Goldstone), et celles dues à la présence des défauts topologiques. Les premières génèrent une modulation spatiale sous la forme de faibles variations de l'ordre local, alors que les défauts topologiques sont ponctuels en espace et représentent de fortes singularités.

Ces défauts portent une charge topologique positive ou négative. En principe, le système est neutre à toute température : il y a autant de charges positives que de charges négatives. Les défauts de charges opposées s'attirent, et ceux de mêmes charges se repoussent. Dans la phase de basse température, les défauts sont excités par paires. L'appariement de ces défauts de charges positives avec des défauts de charges négatives préserve le quasi-ordre à longue distance du système. A mesure que l'on accroît la température, tout en restant dans la phase ordonnée, la probabilité d'exciter des défauts topologiques augmente, ceci ayant pour conséquence de réduire la rigidité du système : le solide devient de plus en plus mou. Par ailleurs, tant que la proportion de défauts est très faible, les défauts qui composent des états liés ne sentent pas la présence des défauts avoisinants. Quand la fraction de paires de défauts augmente, la probabilité qu'une paire de défauts sente l'influence d'une autre paire devient importante. Quand deux paires ressentent une influence mutuelle, cela écrante l'interaction entre les défauts liés et ceux-ci se désappariement.

A la température de transition, on observe une prolifération de défauts non liés, dont la présence détruit le quasi-ordre à longue distance si bien que la phase de haute température peut être perçue comme un gaz ionisé dans lequel se propagent les défauts chargés.

Comment s'applique la théorie de Kosterlitz-Thouless à la transition de fonte des cristaux à deux dimensions ?

4.2.2 Théorie KTHNY de fonte du cristal

A deux dimensions, le cristal présente deux ordres : un quasi-ordre translationnel et un ordre orientationnel à longue distance. La théorie KTHNY indique d'abord la perte de l'ordre en deux temps due à l'excitation des défauts topologiques de la phase cristalline. Dans cette phase, les défauts topologiques les plus fréquents sont les dislocations, moins coûteuses en énergie. Les dislocations sont des défauts qui portent des charges positives ou négatives que nous définirons dans la suite. A l'équilibre, des paires de dislocations peuvent apparaître spontanément du fait des fluctuations thermiques. Une paire de dislocations, aussi appelée quadrupôle, correspond à deux dislocations de charges opposées qui s'attirent et restent liées. A une certaine température T_m (température de *melting*), la théorie KTHNY suggère que ces paires de dislocations se dissocient, ce qui a pour conséquence de détruire le quasi-ordre translationnel. Cependant, les dislocations ne détruisent pas l'ordre orientationnel. Ainsi, le liquide n'est pas isotrope et on parle de phase hexatique. Enfin, la théorie KTHNY suggère que des dislocations peuvent être perçues comme des paires de désinclinaisons. Ces dernières sont un second type de défauts topologiques et portent aussi des charges positives/négatives. La théorie prédit qu'à une certaine température T_i , les désinclinaisons se repoussent, avec pour conséquence une forte prolifération de désinclinaisons et une deuxième transition de phase continue vers le liquide isotrope. (Réf. [60, 39, 93])

Ce scénario a été réfuté pour les disques durs d'équilibre (Réf. [6]). Comme rappelé dans le chapitre précédent, une transition du premier ordre s'opère entre le liquide isotrope et le liquide hexatique, ce qui suggère la prolifération d'agrégats de défauts et de joints de grains, contrairement à une simple dissociation de désinclinaisons. Cependant, il met bien en lumière le rôle de ces défauts topologiques particuliers dans la phase cristalline à l'équilibre thermodynamique.

4.2.3 Défauts topologiques du cristal en dimension deux

La génération de ces défauts coûte de l'énergie élastique car ils produisent de fortes déformations locales du réseau cristallin. Comme nous l'avons dit dans la partie précédente, ces défauts apparaissent dans un certain ordre quand on réchauffe le

crystal. Ils ont besoin de suffisamment d'énergie thermique, d'abord pour créer une paire de dislocation, puis pour rompre la paire et former des dislocations uniques, qui avec suffisamment d'énergie thermique créeront des désinclinations. **Dislocations.**

Structure :

Dans un réseau hexagonal, une dislocation est une paire de particules ayant 5 et 7 voisins comme représenté sur la figure (4.1-a). Du point de vue de la topologie, une dislocation est obtenue si l'on insère deux demi-rangées de particules supplémentaires dans un réseau parfaitement hexagonal, comme indiqué en pointillé sur la figure (4.1-a).

Une dislocation est un défaut topologique, et aucune transformation continue ne permet le passage d'un réseau déformé par une dislocation vers un réseau parfaitement cristallin hexagonal. En effet, l'opération pour retrouver un réseau parfaitement triangulaire consiste à découper le réseau le long de la ligne hachurée sur la figure (4.1-a), puis de translater les points sur la droite de la ligne de façon à faire correspondre les lettres A, B, C avec avec les lettre A' , B' , C' . Cette construction porte le nom de construction de Volterra et est de toute évidence non continue.

La ligne hachurée sur la figure (4.1-a) indique la direction du vecteur de Burgers (\vec{b}), qui caractérise la charge d'une dislocation. Le sens de \vec{b} donne l'orientation de la dislocation et son module quantifie le nombre de demi-rangées de particules qui

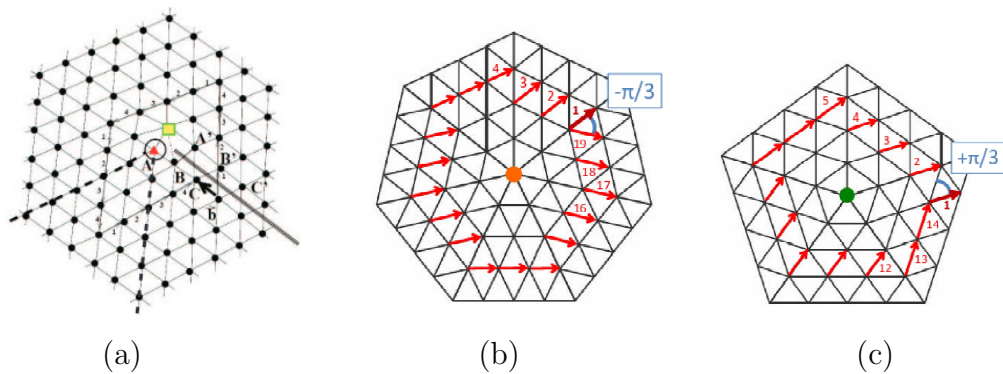


FIGURE 4.1 – **Défauts topologiques dans un cristal.** (a) : dislocation. Couple de particules ayant 5 (triangle rouge) et 7 (carré jaune) voisines. Le vecteur \vec{b} correspond au vecteur de Burger. Nous identifions les lettres A,B,C et A' , B' , C' . Pour retrouver un réseau triangulaire parfait, il faut découper le réseau le long de la ligne hachurée et aligner les trois couples de lettres. Extrait de Réf. [93]. (b) et (c) : Désinclinations 7 et 5 de symétrie. Les flèches rouges correspondent à un vecteur que l'on transporte parallèlement sur un contour fermé autour de la désinclinaison. La différence d'angle dans le sens trigonométrique entre le vecteur initial et final mesure la torsion globale du réseau et donc le changement d'orientation. Extrait de Réf. [22]

ont été insérées dans le réseau parfait pour créer la dislocation. Une méthode facile pour déterminer \vec{b} est de tracer un chemin autour de la dislocation de façon à se déplacer d'un même nombre de pas dans chaque direction du réseau. Si le réseau n'est pas déformé, le chemin se referme exactement au point de départ. Dans le cas d'une dislocation, il présente un excès qui correspond au vecteur de Burgers. Selon la façon dont la dislocation s'insère dans le réseau, et pour des raisons de symétrie nous pouvons compter jusqu'à trois vecteurs de Burgers dirigés selon les trois directions du réseau triangulaire.

Mouvement :

Une dislocation se déplace dans un cristal selon deux modes, le premier parallèlement à \vec{b} que l'on appelle un *gliding* mode, et le deuxième transversalement que l'on appelle un *climbing* mode. Pour un cristal d'équilibre, le *gliding* mode est le plus fréquent.

Désinclinaisons 5/7.

Dans un réseau hexagonal, les désinclinaisons correspondent à des particules isolées ayant cinq ou sept voisins. Une désinclinaison peut être obtenue soit en supprimant, soit en insérant un coin du réseau hexagonal parfait d'angle $\pm\pi/3$. Ceci est illustré sur la figure (4.1-b) et (4.1-c). A partir d'une dislocation, nous obtenons deux désinclinaisons en faisant pivoter les deux côtés de part et d'autre de la ligne hachurée représentée sur la figure (4.1-a) dans des sens opposés d'angle $\pm\pi/3$ et en recollant les extrémités. Clairement, ces opérations ne sont pas continues. La charge du défaut se mesure lorsque l'on prend un vecteur que l'on transporte parallèlement à un contour fermé autour de la désinclinaison et que l'on mesure l'angle dans le sens trigonométrique entre le vecteur initial et le vecteur final. Les désinclinaisons cinq et sept font donc tourner le champ d'orientation respectivement de $+\pi/3$ et de $-\pi/3$.

A noter que des déformations d'angles supérieurs sont possibles mais coûtent plus d'énergie. C'est pourquoi les désinclinaisons les plus fréquentes sont celles ayant cinq ou sept voisins.

Dans cette partie théorique-phénoménologique, nous avons rappelé comment les défauts topologiques sont liés à la fonte des cristaux à l'équilibre. L'objectif de la prochaine partie sera de montrer les différences entre la statique et la dynamique des défauts à haute densité pour les disques ISO et SPP, afin de comprendre leur rôle dans la dynamique spatio-temporelle complexe de la phase dense des disques SPP. Pour cela, nous étudierons comment la densité de défauts évolue en fonction de la fraction surfacique, puis nous tenterons d'illustrer la dynamique des défauts via leurs trajectoires dans le cristal.

4.3 Etude statique et dynamique des défauts topologiques

Cette partie a pour but de mettre en avant les mécanismes qui induisent la fragmentation des clusters dans la phase dense de disques SPP. Nous nous concentrerons uniquement sur l'expérience à $\Phi = 0.84$ réalisée dans la couronne en forme de fleur, qui correspond à la fraction surfacique la plus élevée à laquelle nous avons travaillé et pour laquelle les domaines cristallins ont percolé : ils prennent un maximum de place et pourtant ils continuent à se fragmenter.

Identification de la nature des défauts en pratique

Pour se prémunir de défauts qui seraient générés par la frustration induite par les bords, nous avons rétréci la région d'intérêt pour le comptage des défauts, comme illustré sur la figure (4.2). Nous espérons par conséquent mesurer principalement les défauts relevant des excitations du cristal.

Le comptage des défauts se fait à chaque pas de temps grâce à une triangulation de Delaunay. Celle-ci établit un réseau de voisinage. Avoir une liste des particules ayant un nombre de voisins différents ne suffit pas à compter le nombre de dislocations ou d'autres agrégats de défauts plus complexes. Pour cela, nous réunissons des particules voisines n'ayant pas 6 voisines en réajustant le code écrit lors de l'identification des *clusters* (voir chapitre 3). A l'issue de l'étape de *clustering*, nous identifions facilement les différentes natures de défauts. Une **désinclinaison** correspond à un groupe composé d'un seul disque ayant 5 ou 7 voisins. Une **dislocation** correspond à un groupe de deux particules de 5 et 7. Et une paire de dislocation (quadrupole) correspond à l'arrangement de 4 particules (5 – 7 – 7 – 5) avec la condition nécessaire qu'une particule 5 doit avoir les deux particules 7 comme voisines et une particule 7 doit avoir les deux particules 5 et l'autre particule 7 comme voisines. Les groupes composés d'autres arrangements seront désignés dans la suite par agrégats de défauts.

Instantanés du système

Pour se faire une idée du nombre et de la répartition spatiale des défauts à haute fraction surfacique, nous montrons des instantanés sur la figure (4.2-c) pour les disques SPP à $\Phi = 0.84$ et sur les figures (4.2-a) et (4.2-b), pour les disques ISO à $\Phi \in [0.72 - 0.83]$.

Sur les figures (4.2-a) et (4.2-b), on observe une forte accumulation de défauts au niveau des bords. La forme géométrique de l'arène conduit naturellement à la

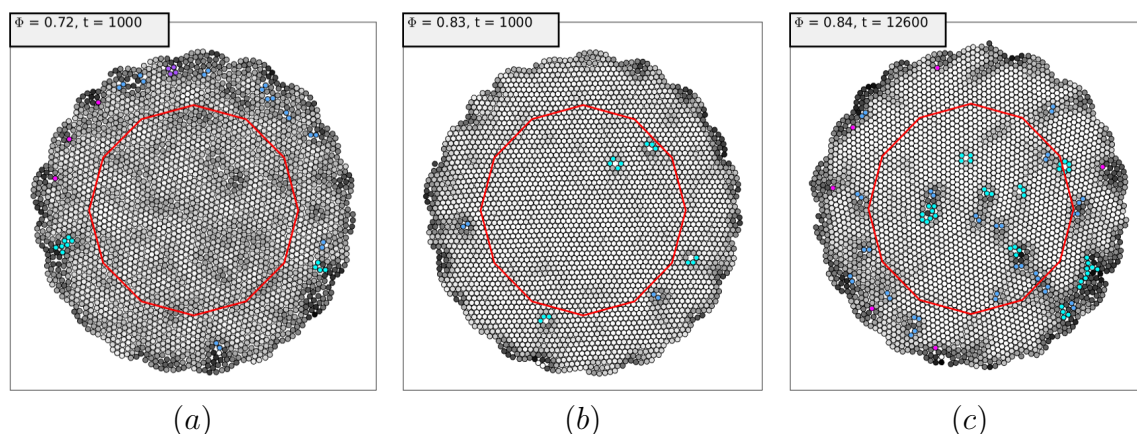


FIGURE 4.2 – **Instantanés illustrant la position des défauts.** Le Φ indiqué en haut à gauche de chaque image correspond comme dans le chapitre 3 à la moyenne des fractions surfaciques des cellules de Voronoï incluses dans la grande région d'intérêt. En revanche, la région d'intérêt pour les mesures statiques des défauts dans ce chapitre correspond à l'intérieur du cercle rouge. Les particules sont représentées dans l'espace réel, coloriées en échelle de gris selon la valeur du champ $\Psi_{\parallel 6}^i$. Les défauts sont représentés par des pastilles de couleurs. Une paire de dislocations est représentée en violet, une dislocation en bleu, une disinclinaison 5 ou 7 en mauve et tous les autres défauts sont dans la classe agrégat en bleu ciel. (a) : disques ISO à $\Phi \sim 0.72$. (b) : disques ISO à $\Phi \sim 0.83$. (c) : disques SPP à $\Phi \sim 0.84$.

formation de défauts. De plus, on observe que l'ordre cristallin est bien établi à ces deux fractions surfacique. Le nombre de défauts observables instantanément est faible. A $\Phi = 0.83$, ce sont même essentiellement des lacunes qui ne sont pas des défauts topologiques.

Sur la figure (4.2-c), correspondant aux disques SPP, l'état du système est très différent. Un grand domaine cristallin a percolé dans tout le système. Au sein même de ce grand domaine cristallin, on observe la présence de plusieurs défauts ponctuels qui se distribuent de façon quasi-uniforme à la surface du domaine. Les défauts majoritaires sont des agrégats de défauts (lacunes ou autres défauts plus complexes) et des dislocations. Par ailleurs, le champ $\Psi_{\parallel 6}$ est loin d'être uniforme.

Une tentative pour décrire la dynamique des défauts

Suivre un défaut topologique est une entreprise très compliquée car un défaut correspond à un état de la particule qui varie en fonction du temps. Un défaut n'est pas exclusivement attaché à une particule et se déplace sans qu'une particule ne se soit réellement déplacée. Afin d'illustrer le caractère mobile ou immobile de certains défauts, nous proposons d'accumuler, sur les instantanés présentés sur la figure (4.2),

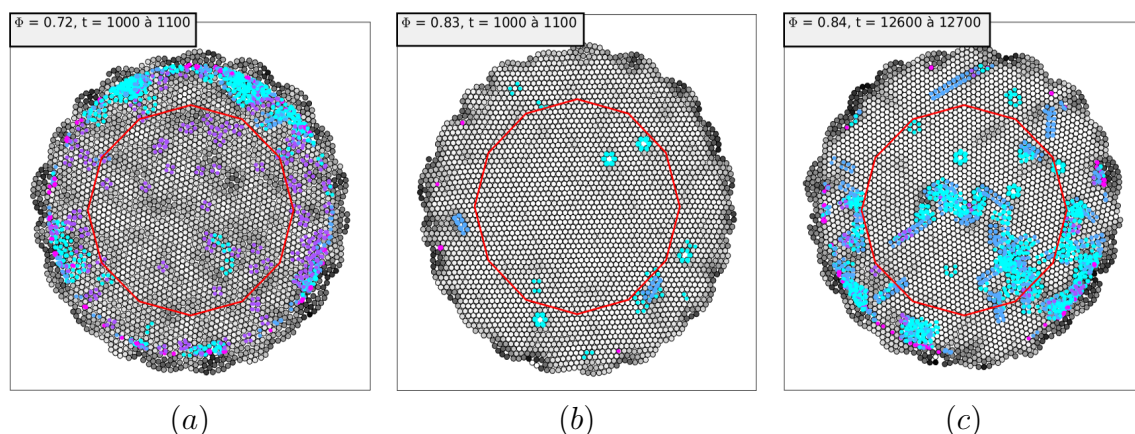


FIGURE 4.3 – **Dynamique des défauts.** Les particules sont coloriées en échelle de gris selon la valeur du champ $\Psi_{\|z\|}^6$. Le code couleur utilisé est le même que pour la figure (4.2) : une paire de dislocations est représentée en violet, une dislocation en bleu, une disclinaison 5 ou 7 en mauve et tous les autres défauts, qui sont dans la classe agrégat, en bleu ciel. (a) : disques ISO à $\Phi = 0.72$. (b) : disques ISO à $\Phi = 0.83$. (c) : disques SPP à $\Phi = 0.84$.

la position des défauts sur une fenêtre de 100 pas de temps. Sur la figure (4.3-a), à la fraction surfacique $\Phi = 0.72$, nous sommes à la limite de la transition de cristallisation pour les disques ISO. Nous observons néanmoins un cristal. Les disques ont de la place pour vibrer, et des fluctuations peuvent apparaître spontanément. À l'intérieur du cristal on peut observer essentiellement l'apparition de paires de dislocations qui se distribuent de façon presque homogène. Par ailleurs, ces défauts se sont quelque peu déplacés, comme en témoigne la présence de zones de niveaux de gris diffuses. Sur la figure (4.3-b), à la fraction surfacique $\Phi = 0.83$, le cristal est beaucoup plus dense que précédemment. Les quelques défauts accumulés dans le temps se superposent essentiellement aux endroits présentant des lacunes, ou dans des zones moins cristallines. De plus, sur la figure (4.2-b) on observait deux agrégats de défauts sur la gauche et en bas à droite. À présent sur la figure (4.3-b) on remarque qu'à ces endroits les défauts se distribuent sur une longueur d'environ 5 diamètres de disques, ce qui laisse penser que les défauts font des aller-retours autour de ces endroits. Les zones grises sont peu diffuses et sont bornées en espace. Ces positions accumulées quasiment au même endroit montrent que les défauts dans la structure cristalline ont été gelés lors de la fabrication du cristal.

Sur la figure (4.3-c) relative aux disques SPP, le contraste est saisissant à $\Phi = 0.84$. La région désordonnée s'étend et envahit la région cristalline. Dans les régions cristallines, on observe essentiellement des tâches diffuses d'agrégats de défauts et des lignes de dislocations orientées dans plusieurs directions. Les lignes continues de dislocations suggèrent une propagation de celles-ci avec une forte mobilité dans les domaines cristallins.

En conclusion, ces illustrations de la dynamique des défauts montrent que le peu de défauts présents au cours du temps pour les disques ISO sont gelés dans la structure. Les défauts ne se propagent pas. Pour les disques SPP, les défauts dans la zone cristalline sont fugaces et se déplacent facilement sur plusieurs diamètres de disques.

Densités de défauts en fonction de Φ

A chaque pas de temps nous relevons le nombre de défauts et leur type dans la région d'intérêt (ROI) délimitée par les bords du cercle représenté en rouge sur les figures (4.2) et (4.3). Nous calculons la densité de défauts de façon à ce que la densité d'un défaut tienne compte du nombre de particules impliquées dans le défaut (Réf. [40]). Ainsi, une dislocation est composée de deux particules, leur densité est $2 \times N_d(t)/N_0(t)$, avec $N_d(t)$ et $N_0(t)$ respectivement le nombre de dislocations et de particules détectées dans la ROI au temps t . La densité d'une désinclinaison vaut $N_{d5}(t)/N_0(t) + N_{d7}(t)/N_0(t)$, avec $N_{d5}(t)$ et $N_{d7}(t)$, le nombre de désinclinaisons cinq et sept. Les paires de dislocations ont une densité au temps t égale à $4 \times N_p(t)/N_0(t)$, avec N_p le nombre de paires. La mesure de la densité d'agrégats se fait dans le même esprit, tout en faisant attention à compter exactement le nombre de disques dans chaque agrégat pour compter correctement leur densité. Enfin, nous moyennons les densités de chaque type de défauts sur l'ensemble des pas de temps.

Sur la figure (4.4-a) nous représentons la densité de défauts en fonction de la fraction surfacique pour les disques ISO. La figure (4.4-b) constitue un zoom de la figure (4.4-a).

Pour $\Phi > 0.72$ nous n'observons quasiment pas de défauts, hormis une fluctuation qui vient du fait qu'un défaut impliquant quelques disques s'est retrouvé "gelé" dans le cristal au cours de la période d'équilibration du cristal. Pour $\Phi \sim 0.75$ on mesure quelques paires de dislocations. Les disques ont plus de place pour vibrer, et les fluctuations sont plus à même de former spontanément des paires de dislocations. Parmi les défauts topologiques simples, les paires de dislocations et les dislocations sont observées avec la même fréquence. Si l'on se réfère aux résultats de l'équilibre, nous pouvons faire l'hypothèse que des paires de dislocations se forment spontanément, puis restent liées ou bien se repoussent, permettant l'observation de dislocations. Vu la faible proportion de désinclinaisons, ceci laisse penser que l'ordre orientationnel est préservé et que le système est dans sa phase hexatique. Quand Φ diminue, on note que les dislocations et les désinclinaisons s'observent plus fréquemment, mais les quadrupôles disparaissent. Cela signifie que des dislocations se forment spontanément, sans que ce soit des paires de dislocations qui se dissocient. Pour $\Phi \sim 0.71$, nous observons une croissance très forte de l'ensemble des défauts et en particulier des agrégats. Le cristal a fondu.

Sur la figure (4.4-c) nous représentons la densité de défauts en fonction de Φ pour les disques SPP. Nous représentons aussi un zoom sur la figure figure (4.4-d).

Même à la fraction surfacique la plus élevée, $\Phi = 0.84$, on voit que les agrégats de défauts dominent largement. Leur densité est tout à fait comparable à celle que l'on mesure juste en dessous de la transition liquide-cristal pour les disques ISO. Nous observons aussi la présence de dislocations, mais remarquons la très faible présence de paires de dislocations. Cette asymétrie constitue une différence très nette avec ce que l'on observe dans le cas des disques ISO. En effet, pour les ISO, à moins de geler un défaut dans la structure, les dislocations n'apparaissent que si des paires de dislocations interagissent entre elles, permettant aux dislocations de se désapairer. Ainsi dans le cas des disques SPP, étant donnée la quasi-absence de paires de dislocations et la très forte densité d'agrégats, on peut supposer que les dislocations sont les excitations élémentaires en présence de l'activité.

4.3.1 Conclusion

L'étude des défauts marque un fort contraste entre les deux espèces de disques.

En ce qui concerne les disques ISO, à haute fraction surfacique, ils sont dans un état cristallin. Le cristal est dense et il n'est pas excité. Le peu de défauts que l'on mesure provient des défauts gelés dans la structure. Ces défauts ne permettent même pas de faire relaxer localement le cristal sur notre durée d'expérience. Quand la densité est plus faible, les disques ont alors plus de place pour vibrer. Des fluctuations permettent à des paires de dislocations, puis à des dislocations d'apparaître. Ceci montre un lien de cause à effet entre la présence de paires de dislocations et des dislocations uniques. La fonte est alors due à la prolifération de ces défauts. Ce scénario ressemble à celui de la fonte des cristaux d'équilibre, même si nous n'avons pas élucidé la question de la nature continue ou discontinue des transitions de phases.

Dans le cas des disques SPP, même à $\Phi \sim 0.84$ où l'on a reporté la présence d'un cluster ordonné qui a percolé et d'une réduction drastique de la place laissée aux particules dans les zones hors clusters, nous mesurons une très forte densité d'agrégats de défauts et de dislocations. Nous notons aussi la quasi-absence de paires de dislocations. Ceci implique que les dislocations sont excitées différemment que dans le cas du cristal d'équilibre. On observe que ces défauts sont mobiles et fugaces et semblent se propager aisément dans toute la structure cristalline, comme en attestent les lignes de dislocations observables sur la figure (4.3-c). Ainsi, la mobilité des défauts constitue une différence majeure entre le cristal d'équilibre et le cristal actif. Cette mobilité est très certainement responsable de la relaxation structurelle anormalement rapide du système de SPP.

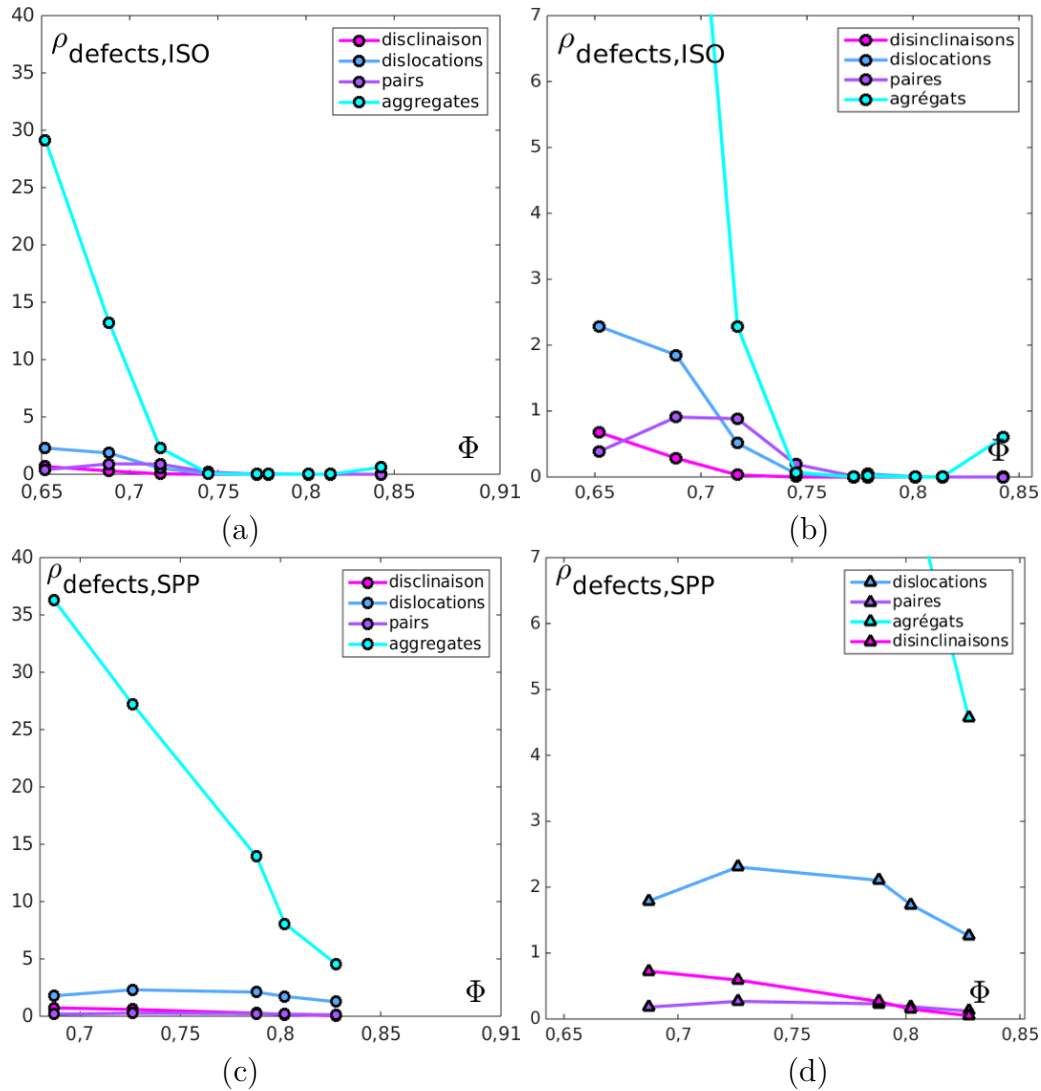


FIGURE 4.4 – **Densités de défauts en fonction de Φ .** Le Φ mesuré en abscisse est pris comme la valeur des fractions surfaciques des cellules de Voronoï incluses dans la région d'intérêt restreinte. (a) : Densité de défauts pour les disques ISO en fonction de Φ . Les dislocations sont en bleu foncé, les désinclinaisons sont en rose, les paires de dislocations sont en violet et les agrégats sont en bleu ciel. (b) : Zoom de la figure (a) sur la densité de défauts d'ISO entre 0 et 7. (c) : densité de défauts pour les disques SPP en fonction de Φ . (d) : Zoom de la figure (c) sur la densité de défauts de SPP entre 0 et 7.

4.4 Expériences dans un hexagone

En commençant les expériences sur la cristallisation, nous nous attendions à une compétition entre la force de propulsion des disques et les effets d'exclusion de volume qui contrôlent la transition de cristallisation à l'équilibre. Nous nous disions que plus la densité serait élevée plus l'espace disponible aux disques SPP pour relaxer vers leur vitesse nominale serait petit. Nous nous attendions alors à ce que la longueur de persistance diminue fortement, à ce que le disque perde son activité à mesure que la fraction surfacique augmente, et à ce que les interactions stériques prennent le dessus, conduisant alors à la formation d'un cristal. Comme nous l'avons vu, jusqu'à une fraction surfacique $\Phi = 0.84$, ce n'est pas le cas.

Cependant, même dans le cas des disques ISO, nous observons une grande propension à la nucléation de défauts sur la périphérie de la couronne, dont la géométrie frustre énormément l'ordre cristallin. On peut se demander si une géométrie plus favorable ne permettrait pas de stabiliser le cristal. Pour cela nous avons réalisé des expériences dans une arène hexagonale parfaitement régulière, de sorte à éliminer toute frustration induite par le confinement.

Par ailleurs, en partant du constat qu'à l'arrangement hexagonal le plus compact qu'il soit $\Phi = \frac{\pi}{2\sqrt{3}}$ les disques durs doivent cristalliser et rester totalement figés à leur position qu'ils soient actifs ou non, nous avons construit un hexagone laissant un minimum de liberté aux disques de vibrer en se plaçant à une fraction surfacique très élevée ($\Phi \sim 0.88$).

L'objectif de cette seconde partie est d'abord de voir si en l'absence de frustration un cristal de disques polaires est stable à cette densité. Ensuite, si l'on introduit de la frustration géométrique en enlevant quelques particules tout en restant à une densité très élevée, les disques actifs forment-ils un solide avec des défauts gelés dans leur structure ? Puis, qu'advient-il du cristal si on réduit la fraction surfacique sans introduire de frustration ? Pour répondre à cette dernière question nous avons eu recours à l'aide de simulations numériques réalisées par Michael Schindler. Enfin le recours aux simulations nous a permis de caractériser les effets de taille finie.

Nous commencerons la partie suivante en détaillant les différents points du protocole expérimental, puis nous montrerons quelques cartes illustrant la structure aux différentes densités avant de finalement répondre aux questions posées ci-dessus, en décrivant la dynamique.

Caractéristiques expérimentales

Nous avons réalisé de nouvelles expériences pour les deux types de disques en les plaçant dans une arène hexagonale, telle que l'on puisse y déposer 1141 disques pour une fraction surfacique $\Phi \sim 0.88$ sans créer de frustration. La valeur de 1141 vient

du fait que nous souhaitons construire un hexagone en disposant exactement vingt disques le long de chaque bord, or une formule relie le nombre n de particules le long d'un bord sur la dernière couche et le nombre total de disques N à l'intérieur de l'enceinte $N = 1 + 3n(n - 1)$. Le choix de la longueur des bords a été fixé à 80 mm.

Par ailleurs, la couronne hexagonale a été imprimée avec une imprimante 3d assurant une hauteur de 2 mm homogène (la hauteur des disques) et permettant d'obtenir des parois rigides en plastique. Cette couronne a été attachée avec du scotch sur le plateau vibrant.

Pour toutes les expériences, nous avons travaillé à une accélération $\Gamma = 2.4$ et à une fréquence de vibration de 95 Hz. Le temps d'équilibration entre chaque expérience a été fixé à 10 minutes avant d'acquérir des images pendant 5 minutes à 30 Hz.

Nous avons fait varier le nombre de disques à l'intérieur pour les deux types de disques dans l'ordre décroissant en partant de 1141 disques. 7 expériences ont été faites pour les disques ISO, au cours desquelles nous avons retiré progressivement 20 disques environ pour atteindre 1027 disques. Dans cette configuration on n'observe de nouveau pas de frustration, le nombre de disques correspondant à un arrangement hexagonal parfait avec 19 disques le long de chaque bord. Une expérience intermédiaire entre 1123 et 1141 disques a été réalisée pour les disques SPP afin de diminuer plus finement le nombre de disques.

Le tableau (5.1) résume les différentes valeurs de N étudiées.

N_{ISO}	1027	1047	1066	1085	1104	1123	\emptyset	1141
N_{SPP}	1027	1047	1066	1085	1104	1123	1133	1141
Φ	0.80	0.81	0.83	0.84	0.86	0.87	0.877	0.88

TABLE 4.1 – **Configurations des expériences d'ISO et de SPP dans l'enceinte hexagonale.** L'aire vaut $A = 1014.12$ (adimensionnée en diamètre de particule). L'accélération du vibreur est fixée à 2.4 et la fréquence à 95 Hz. L'équilibration s'est faite durant 10 minutes et les enregistrements se sont faits à 30 images par seconde pendant 5 minutes.

4.4.1 Défauts et structure

Pour établir une connexion entre les expériences réalisées dans l'arène en forme de fleur et celles réalisées dans l'enceinte hexagonale, nous commençons par montrer des instantanés de la structure en y faisant figurer la position des défauts, puis nous donnerons une première idée de la dynamique des défauts en représentant trois cartes séparées de 20 pas de temps, sur lesquelles nous représenterons la position des défauts.

Quelques remarques préalables s'appliquent à toutes les illustrations de cette section. Nous représenterons systématiquement des cartes avec les positions des disques coloriés selon la valeur du champ $\Psi_{\parallel 6\parallel}$ dans une échelle de gris : le blanc indique une particule bien ordonnée, et une cellule en noir indique une particule désordonnée. Les particules situées sur la couche la plus éloignée du centre n'ont pas 6 voisines, en conséquence y seront représentés des défauts, mais l'on conviendra qu'il ne s'agit pas d'excitation de la structure cristalline.

ISO. Sur les figures (4.5-a,b,c), nous représentons l'état statique à $N = 1141$ à trois instants séparés de 20 pas de temps. Sur ces deux cartes, on ne mesure pas de défauts et le cristal est parfait. Les quelques fluctuations du champ observées correspondent au fait que le cristal vibre et donc instantanément le champ montre quelques fluctuations spatiales. Lorsque nous retirons 18 disques, nous observons sur les figures (4.5-d,e,f) la présence de trois zones fortement frustrées qui se répartissent à différents endroits dans l'hexagone. Les défauts se déplacent au sein de ces zones, mais celles-ci sont statiques aux échelles de temps considérées. Nous procédons de même pour un nombre $N = 1085$ visible sur les figures (4.5-g,h,i). On enregistre quelques défauts dont cinq lacunes et une dislocation. A nouveau entre les différents instants, les lacunes et la dislocation ne se sont quasiment pas déplacées. A présent, concentrons-nous sur les figures (4.5-j,k,l) correspondant à $N = 1027$. Comme à $N = 1141$, nous n'observons pas de défaut : on observe une structure cristalline parfaite, présentant cependant des fluctuations plus importantes de $\Psi_{\parallel 6\parallel}$.

Vue notre connaissance du cristal de disques ISO à plus basse densité à condition d'être à une fraction surfacique au-dessus de 0.72, ces instantanés confirment nos intuitions de départ : déposer un nombre de disques dans une enceinte hexagonale régulière permet la formation d'un cristal de disques ISO sans défaut à $N = 1141$ et à $N = 1027$. Déposer un nombre de disques ne respectant pas la symétrie hexagonale a pour conséquence de générer de la frustration et un cristal avec des défauts gelés ou diffusifs.

SPP. Pour un nombre de disques de 1141 (figures 4.6-a,b,c), nous ne mesurons pas de défaut, et les fluctuations du champ sont faibles, aux trois instants séparés de 20 pas de temps représentés sur les figures. Ceci signifie que les disques SPP forment un cristal. On en conclut que pour cette configuration hexagonale bien spécifique, et pour cette taille de système, il existe un régime de fraction surfacique où le cristal de SPP est stable. En retirant 8 disques, outre deux lacunes visibles sur les extrémités, nous observons une zone qui concentre l'ensemble des défauts. Celle-ci semble se maintenir au même endroit, ce qui laisse penser à un défaut gelé à l'image de ce que l'on a reporté pour les disques ISO. En mettant 1123 disques SPP dans l'hexagone (figures (4.6-d,e,f)), nous constatons que l'arrangement des défauts a changé. Ce qui est totalement nouveau par rapport aux observations précédentes, c'est l'arrangement des disques dans une structure carrée aux niveaux des diagonales, ce qui indique un fort cisaillement à l'intérieur du cristal. Entre les différents

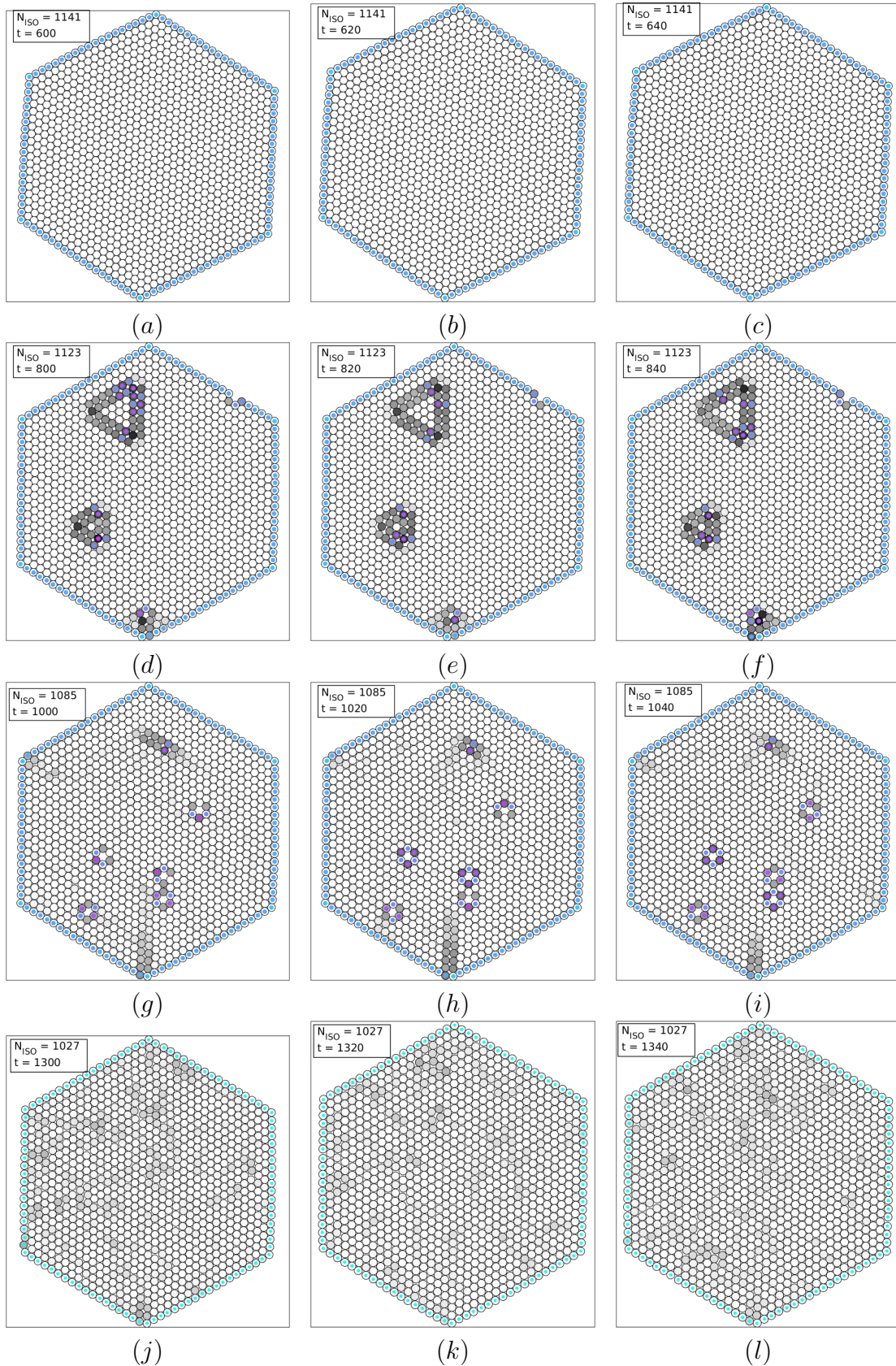


FIGURE 4.5 – Instantanés et défauts en fonction de N : cas des ISO. Trois instantanés séparés de 20 pas de temps ; Les particules sont représentées dans une échelle de gris selon l'intensité de la valeur absolue du champ local Ψ_6 , une particule blanc à un fort ordre hexatique, tandis qu'une particule noire à un ordre hexatique faible. Les défauts sont en bleu ciel lorsqu'ils ont 5 voisins et en violet quand ils en ont 7. (a),(b) et (c) : $N=1141$. (d),(e) et (f) : $N=1123$. (g),(h) et (i) : $N=1085$. (j),(k) et (l) : $N=1027$ particules.

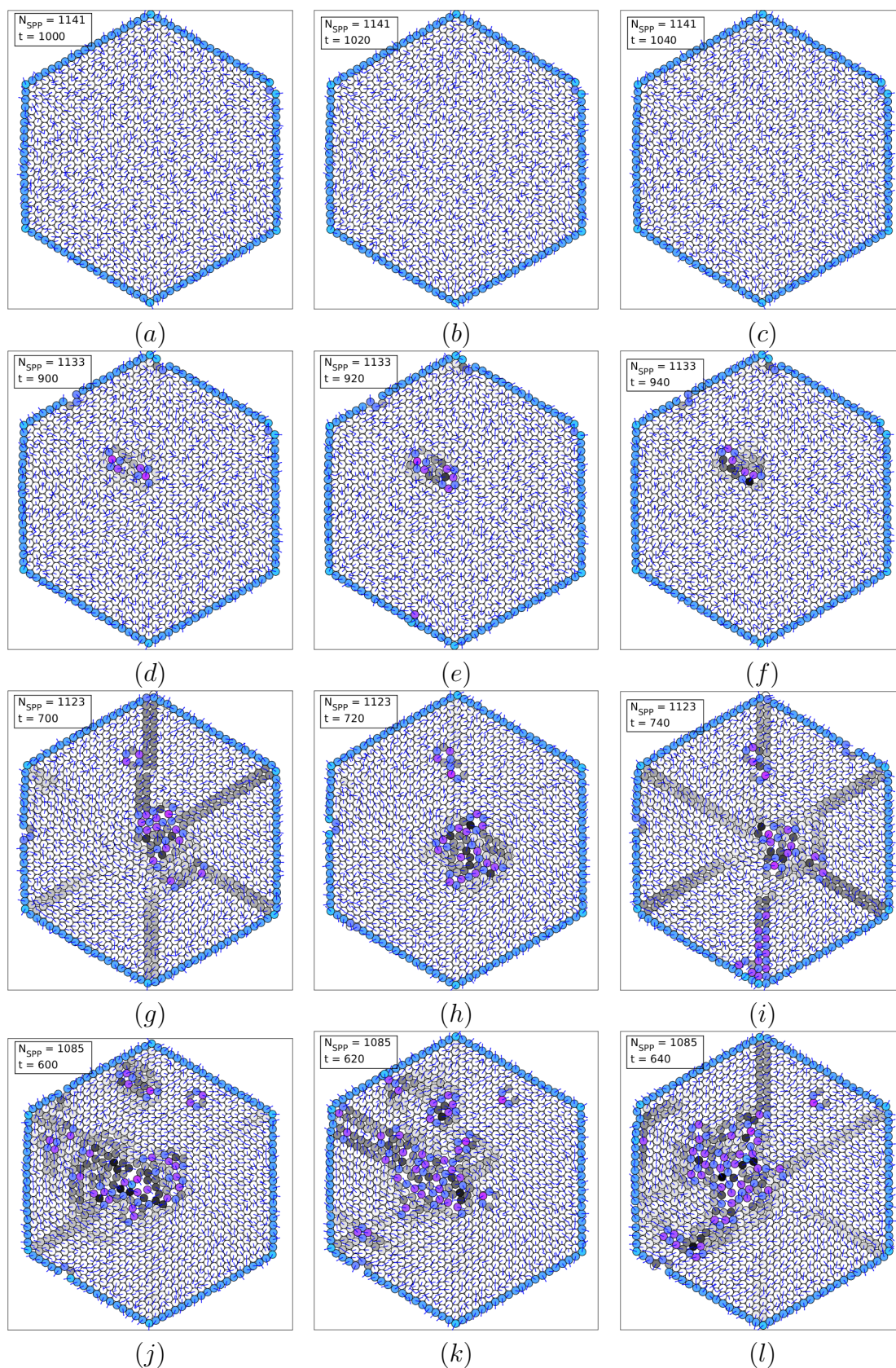


FIGURE 4.6 – **Instantanés et défauts en fonction de N : cas des SPP.** Trois instantanés séparés de 20 pas de temps ; Les particules sont représentés dans une échelle de gris selon l'intensité de la valeur absolue du champ local Ψ_6 , une particule blanc à un fort ordre hexatique, tandis qu'une particule noire à un ordre hexatique faible. Les défauts sont en bleu ciel lorsqu'ils ont 5 voisins et en violet quand ils en ont 7. Les flèches indiquent la polarité des disques. (a),(b) et (c) : $N=1141$. (d),(e) et (f) : $N=1133$. (g),(h) et (i) : $N=1123$. (j),(k) et (l) : $N=1085$.

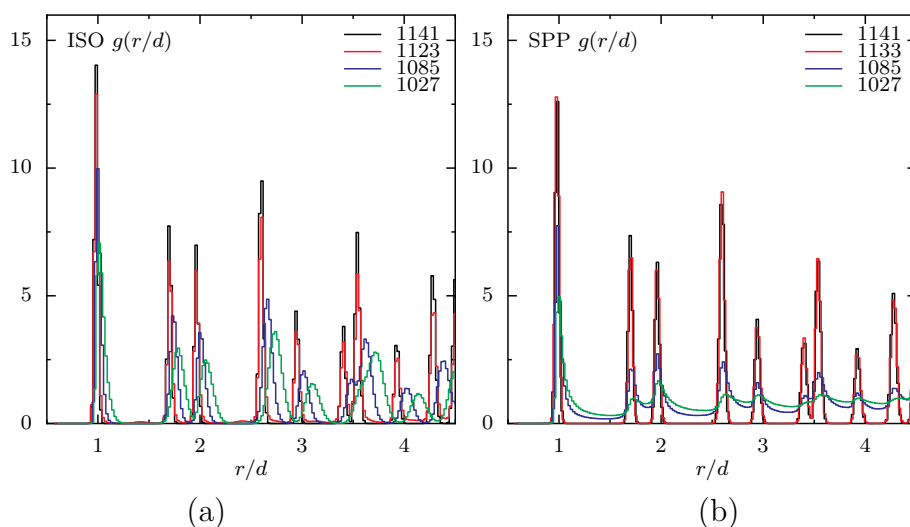


FIGURE 4.7 – **Fonction de corrélation de paires.** (a) : pour les ISO, $N \in [1141, 1123, 1085, 1027]$. (b) : pour les SPP, $N \in [1141, 1133, 1085, 1027]$.

instants séparés de 20 pas de temps, nous observons des changements abrupts de configurations, indiquant une dynamique très intermittente durant laquelle les défauts apparaissent et disparaissent. En retirant davantage de disques, à 1085 disques (figures (4.6-g,h,i)), le nombre de défauts a fortement proliféré. Les défauts semblent se concentrer principalement au sein d'une zone désordonnée, qui coexiste avec un grand domaine cristallin. Puis à différents instants, on constate encore un régime fortement intermittent avec de fortes fluctuations du nombre de défauts, ainsi que de leur répartition spatiale. Enfin, contrairement aux disques ISO, à $N = 1027$ les disques SPP (figures 4.6-j,k,l) ne forment en aucun cas un cristal parfait, et au vu des instantanés, il semble que les SPP sont à nouveau dans une phase avec une dynamique intermittente de clusters où coexistent des particules ordonnées et désordonnées qui changent d'état régulièrement.

De plus, on remarque que pour N allant de 1133 à 1027, les défauts ont tendance à s'accumuler principalement au centre, et que dans le même temps les disques s'accumulent le long des bords, ce qui suggère que l'hexagone promeut la cristallisation à partir des bords.

Fonction de paires.

Pour aller plus loin dans l'étude de la structure, nous représentons la fonction de corrélation de paires $g_2(r)$ sur la figure (4.7) pour les disques ISO à gauche et pour les SPP à droite. La fonction de paires pour les disques ISO est représentative d'un ordre translationnel hexagonal. Pour les configurations cristallines parfaites à $N = 1141$ et à $N = 1027$, les pics situés à différentes positions spatiales ne se chevauchent pas, ce qui témoigne de l'homogénéité spatiale dans la répartition des disques. Du fait d'une densité plus élevée, les pics sont plus resserrés et plus haut

à $N = 1141$ qu'à $N = 1027$. Autrement dit, les disques ont moins de place pour vibrer dans leur cage. Pour les configurations cristallines présentant des défauts, la fonction de paires montre néanmoins l'existence d'un ordre translationnel hexagonal, les défauts étant en fait peu nombreux. A nouveau on observe que plus N croit et plus les pics se resserrent et augmentent en taille.

Pour les disques SPP, l'ordre translationnel hexagonal s'observe pour tous les N . Cependant, plus N diminue et plus les pics s'élargissent et se chevauchent.

En résumé, pour les ISO tout se passe comme attendu pour des disques durs d'équilibre. A $N = 1141$, les disques SPP forment un cristal. Le passage de 1141 à 1027 est en tout point différent des disques ISO. Trois régimes se distinguent :

1. Le premier, où le cristal se maintient. Il correspond à un nombre $N = 1141$. Lorsque l'on retire quelques disques, ils forment des lacunes. Ces lacunes sont statiques.
2. Le deuxième régime s'étend de $N = 1133$. Dans ce régime, les disques forment un cristal. Mais le nombre de disques retirés est suffisant pour former une "goutte" de "volume libre". C'est-à-dire que de l'espace inter-disque se libère et se condense dans l'espace. On observe que cette goutte explore l'ensemble de l'arène et se déplace rapidement dans le cristal comparé au déplacement d'une simple lacune. Au passage de cette goutte, les particules se réorganisent et le réseau de voisinage est modifié : la structure relaxe !
3. En-deçà de 1123, le troisième régime apparaît. Si les instantanés laissent penser à une configuration cristalline, les disques bougent et donc la structure coule. Le mouvement des disques est hétérogène : les disques du centre de l'arène se déplacent peu, tandis que ceux qui se répartissent au delà de quelques diamètres du centre tournent dans la même direction. Plus les disques sont proches des bords et plus ils semblent se maintenir dans leur couche, tout en bougeant le long des bords.
Donc à partir de $N = 1123$, la dynamique intermittente des lignes sur les diagonales où les disques forment un réseau carré s'explique par le fait que les disques forment des blocs cristallins très compacts dans chaque zone de l'hexagone et lorsque l'extrémité d'un bloc passe d'un quadrant à un autre, les disques sautent d'un réseau triangulaire à un réseau carré.

Enfin, plus on retire des disques, et plus la structure se désorganise depuis le centre. On obtient un comportement très similaire à ce que nous avons reporté et décrit dans les expériences dans la couronne en forme de fleur. Les disques sont dans une phase hautement intermittente, et les disques changent fréquemment d'états ordonnés/désordonnés.

Les plages de N indiquées dépendent essentiellement des expériences faites. Il n'est pas à exclure que le passage d'un régime à un autre soit hystérétique. En effet, nous avons fait plusieurs expériences pour des mêmes N , selon que nous augmentions le nombre de disques dans l'arène ou que nous le diminuions, nous n'observions pas toujours le même régime. Par exemple, incorporer des disques dans la zone de dépletion à partir d'un régime tournant permettait au cristal de continuer à tourner. A l'inverse, commençant par le régime dans lequel une goutte se propage, retirer un disque n'entraînait pas nécessairement une rotation du cristal. Cette observation ne valant bien sûr que pour la durée d'observation.

Ces observations qualitatives nous incitent à passer à une étude plus quantitative de la dynamique. Dans la mesure où les disques ISO forment un cristal au sein duquel les disques vibrent autour de leur position moyenne, l'étude de la dynamique des disques ISO ne présente pas beaucoup d'intérêt. Seules les dynamiques des disques SPP seront présentées.

4.4.2 Dynamique

Trajectoires typiques des SPP dans l'hexagone

Nous commençons par montrer sur la figure (4.8) les trajectoires de 10 disques SPP à 1123. Les trajectoires ont une forme hexagonale, ce qui témoigne du fait que les disques se déplacent parallèlement aux bords de l'hexagone. Plus les disques sont proches du centre, et plus leur trajectoires se chevauchent. Les trajectoires présentent des sauts situés principalement autour des diagonales. L'ensemble de ces trajectoires indiquent que plus les disques sont éloignés du centre et plus ils se maintiennent dans leur couche, tout en se déplaçant. Les disques développent une rotation d'ensemble qui n'est cependant pas une rotation solide.

La signature hexagonale des trajectoires suggère que si nous souhaitons étudier le mouvement des disques, nous devons choisir un repère tournant avec l'hexagone. Pour ce faire, nous découpons l'hexagone en six zones, auxquels nous associons une base cartésienne constituée d'un vecteur parallèle au bord, et d'un vecteur perpendiculaire (voir figure 4.8). La trajectoire d'un disque sera décomposée selon ces 6 bases. Pour un disque repéré par le point M dans le quadrant $i \in 1, \dots, 6$, nous projetons la direction \overrightarrow{CM} sur les axes $\vec{e}_{i\parallel}$ et $\vec{e}_{i\perp}$, où C est le centre de l'hexagone.

Cette décomposition doit préserver la continuité des trajectoires. Il est facile de vérifier qu'au passage d'un quadrant à un autre, la composante perpendiculaire est continue et la composante parallèle ne l'est plus. En effet, le changement de quadrant induit un changement de signe de la composante parallèle, si bien qu'il est nécessaire de la rendre continue à chaque saut entre deux quadrants. De plus, pour tenir compte du fait qu'un disque peut tourner à plusieurs reprises dans l'arène,

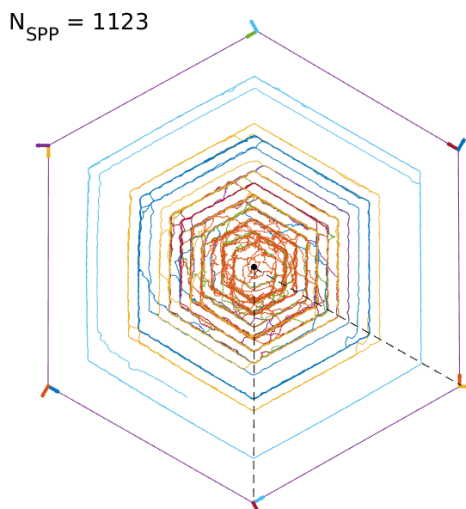


FIGURE 4.8 – **10 trajectoires de disques SPP à $N = 1123$.** Les deux droites en pointillés marquent un quadrant de l’hexagone. Le repère associé à ce quadrant est composé du centre de l’hexagone représenté par le point noir et des vecteurs parallèle et orthogonal représentés en bas de l’hexagone. Les autres repères correspondants aux 5 autres quadrants sont indiqués par les différents vecteurs placés le long de l’hexagone.

nous définissons la trajectoire selon sa composante parallèle comme la cumulée de celle-ci au cours du temps.

Composantes parallèles et normales en fonction du temps

Sur la figure (4.9-a) nous représentons l’évolution temporelle des composantes parallèles (r_{\parallel}/d) et normales (r_{\perp}/d) de quelques disques pour les expériences à $N \in [1141, 1133, 1085]$. A $N = 1141$, les deux composantes sont constantes et fluctuent très peu, de l’ordre du dixième de diamètre de grain autour de leurs positions. Les disques vibrent donc de façon isotrope autour de leur position initiale. Pour $N = 1133$, on observe des composantes parallèles ou transverses qui sautent positivement ou négativement de l’ordre de quelques diamètres d de disques. Ceci signifie que certains disques se sont déplacés de façon isotrope. Ce mouvement résulte du passage de la “goutte”. Pour $N = 1085$, toutes les composantes parallèles des disques sélectionnés sont linéaires : le mouvement est balistique. Les composantes transverses se scindent en deux catégories, celles pour lesquelles les disques sont proches des bords, qui montrent des trajectoires quasi-constantes hormis quelques sauts, et celles dont les disques sont situés au maximum à 10 diamètres de grains du centre, pour lesquels on observe des trajectoires très fluctuantes : les disques changent de strates régulièrement.

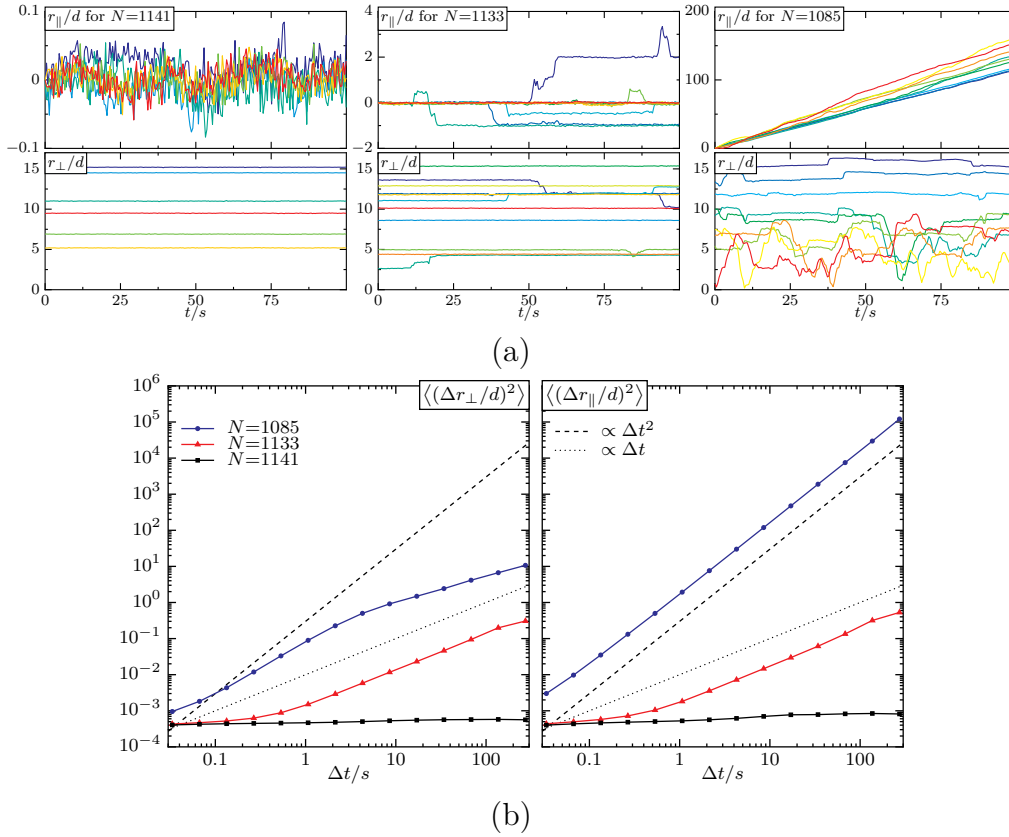


FIGURE 4.9 – **Dynamique des disques SPP dans le repère de l’hexagone.** (a) : Trajectoires de quelques disques pour les expériences à $N \in [1141, 1133, 1085]$ projetées selon la composante parallèle au bord de l’hexagone (haut) et la composante normale (bas). (b) : gauche : Déplacements quadratiques moyens selon la composante transverse. droite : Déplacements quadratiques moyens selon la composante parallèle.

Déplacements quadratiques moyens parallèle et transverse

A partir des composantes et des trajectoires nous mesurons les déplacements quadratiques moyens (MSD) selon la composante normale et parallèle représentés sur la figure (4.9-b). Pour les disques SPP, nous reconnaissons et identifions clairement trois régimes. Au cours du premier à $N = 1141$, les MSD sont strictement plates selon les deux directions, les disques ne se déplacent pas. Le second régime correspond à celui de la “goutte” pour $N = 1123$. On observe une dynamique d’abord sous-diffusive aux temps courts, suivie d’un régime diffusif aux temps longs dans les deux directions. Enfin pour $N = 1085$, le mouvement est anisotrope. Il est sous-diffusif puis diffusif selon la direction normale et est toujours super-diffusif parallèlement aux bords.

Conclusion sur la stabilité du cristal de SPP

En l'absence de frustration géométrique induite par le retrait de quelques particules, on a montré expérimentalement que le cristal de disques SPP dans une géométrie non frustrante est stable pour $\Phi \sim 0.88$, pour la taille de système considéré.

4.4.3 Simulations numériques

Nous nous sommes demandés si le modèle reproduisant très fidèlement la dynamique individuelle et collective des disques dans la phase liquide pouvait capturer les régimes décrits ci-dessus (Réf. [94, 47]). Le cas échéant, peut-il nous permettre de distinguer l'effet de la frustration et celui de la densité, et de caractériser les effets de taille finie ?

Nous rappelons les équations, présentées et détaillées dans le chapitre 2 de cette thèse.

$$\frac{d}{dt}\vec{r}_i = \vec{v}_i, \quad (4.2a)$$

$$\tau_v \frac{d}{dt}\vec{v}_i = \hat{n}_i - \vec{v}_i, \quad (4.2b)$$

$$\tau_n \frac{d}{dt}\hat{n}_i = (\hat{n}_i \times \vec{v}_i) \times \hat{n}_i, \quad (4.2c)$$

avec τ_v et τ_n les deux temps de relaxation de la vitesse et de la direction de la force active. A ces équations (4.2b) et (4.2c) déterministes, nous ajoutons un bruit Gaussien de moyenne nulle et de variance $2D$. Les paramètres du modèle sont $\alpha = \tau_n/\tau_v$ et D . Pour des valeurs $\tau_v = 0.25$, $\alpha = 0.867$ et $D = 2.16$, on observe trois régimes dynamiques sensiblement identiques à ceux observés expérimentalement pour $N \in [1085, 1126, 1141]$. Le modèle numérique est donc très robuste, y compris pour étudier la dynamique à très hautes fractions surfaciques.

Modifier N ou l'aire A permet-il de contrôler la fraction surfacique de façon équivalente ?

Nous nous demandons à quel point la physique change en fonction de la fraction surfacique lorsque l'on n'y induit pas de frustration. Pour cela, nous avons fixé le nombre de disques à $N = 1141$ et dilaté la cellule hexagonale de telle sorte que nous obtenions les mêmes fractions surfaciques que dans le cas où nous enlevions des disques. Pour ces expériences numériques, les déplacements quadratiques moyens des composantes normales et parallèles sont représentés sur la figure (4.10). On observe à présent deux régimes au lieu de trois, celui de la goutte disparaît. Pour une aire $A = 1064.91$, nous remarquons un premier régime dans lequel les disques restent totalement piégés et une structure cristalline qui se maintient, puis pour une aire $A = 1027.23$ on observe à nouveau le "rhéo-cristal". On en conclut que la

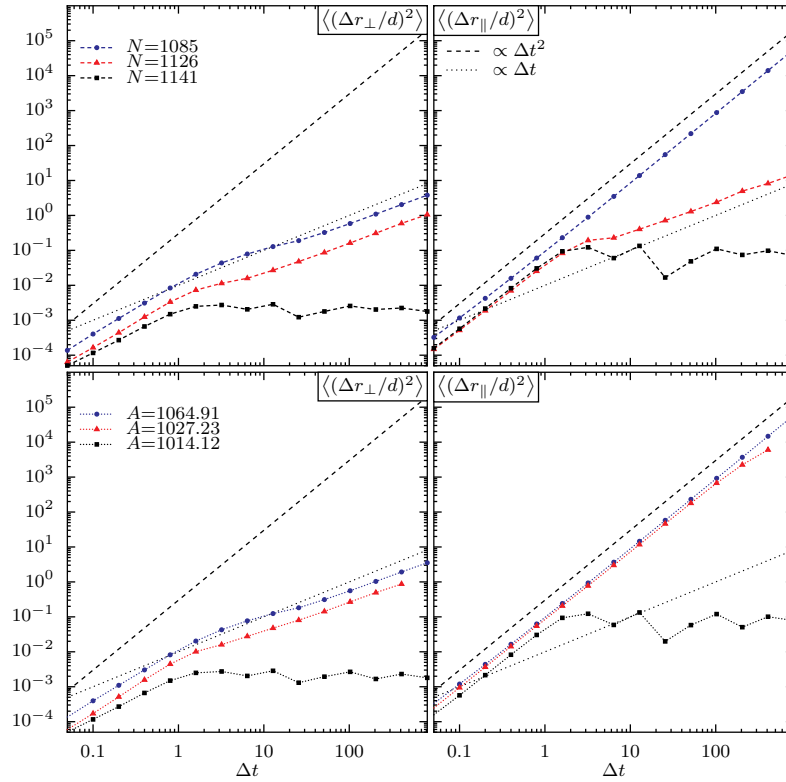


FIGURE 4.10 – **Déplacements quadratiques moyens.** Résultats de la simulation numérique pour les paramètres $\tau_v = 0.25$ et $\alpha = 0.867$ et $D = 2.16$. En haut : composante parallèle (droite) et transverse (gauche) pour $N = 1141$ (courbe noire), $N = 1126$ (courbe rouge), $N = 1085$ (courbe bleue) pour une aire $A = 1014.12$, soit pour $\Phi \in [0.89, 0.878, 0.846]$. En bas : le nombre de particules est fixé à $N = 1141$ et l’aire est modifiée et vaut $A = 1064.91$ (courbe bleue), $A = 1027.23$ (courbe rouge), $A = 1014.12$ (courbe noire) soit $\Phi \in [0.846, 0.878, 0.89]$.

goutte observée résulte de la frustration induite par le manque de disques, tandis que la mise en rotation du cristal est un pur effet de la densité.

Effets de tailles finies

A présent, nous nous demandons si ce régime très surprenant de “rhéo-cristal” se maintient dans la limite thermodynamique c’est-à-dire pour $N \rightarrow \infty$ à Φ constant.

Spectaculairement, on observe sur la figure (4.11-b) que plus N croît¹, plus la fonction de paires se rapproche de celle du réseau hexagonal compact, les pics se resserrent davantage et leurs hauteurs croissent. Mais dans le même temps, sur la

1. ($N \in [1141, 1801, 2611, 3571, 7351, 29701]$)

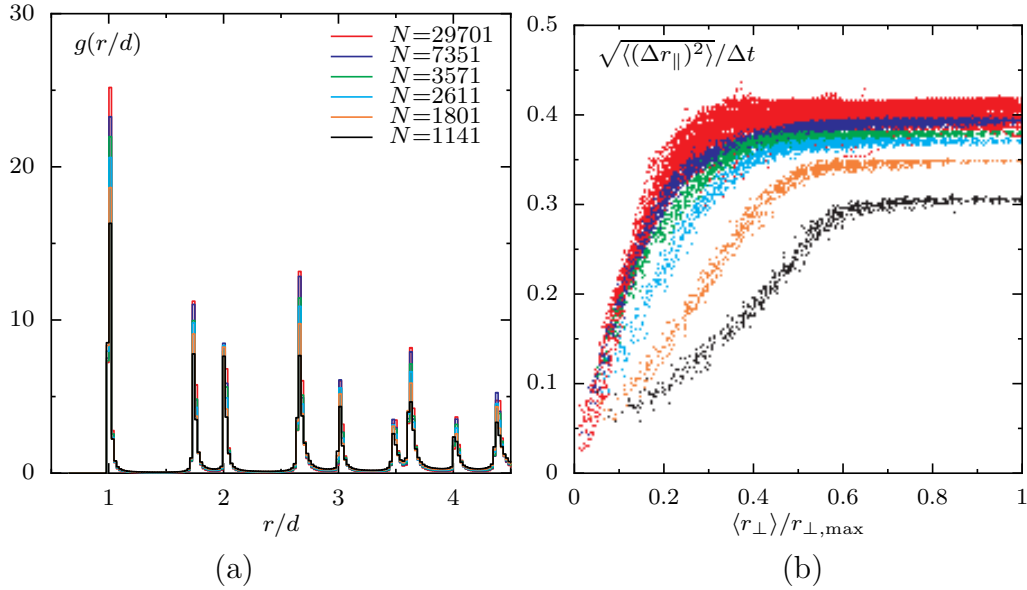


FIGURE 4.11 – **Structure et dynamique en fonction de N .** Résultats des simulations numériques réalisées par M. Schindler [11] pour les paramètres $\tau_v = 0.25$ et $\alpha = 0.867$ et $D = 2.16$. (a) : on représente la fonction de paires pour les différentes valeurs de N indiquées dans la légende ($N \in [1141, 1801, 2611, 3571, 7351, 29701]$) et pour $\Phi = 0.878$. (b) : Le code couleur est le même que celui utilisé pour la figure (a). On représente la norme de la vitesse, prise à un temps $\Delta t = 256$, des disques parallèlement aux bords en fonction de la position normale des disques mise à l'échelle de la position de la couche la plus externe aux différents N .

figure (4.11-a), on observe que plus N croît et plus les disques se mettent en mouvement et se déplacent le long des bords. La vitesse parallèle augmente, puis sature à une valeur proche de 40% de la vitesse nominale des disques. Les disques proches du centre se déplacent moins vite que ceux situés sur des couches loin du centre qui à de grandes distances tendent à avancer avec une vitesse uniforme. Enfin, on note que la distance à partir du centre et à partir de laquelle les particules avancent avec une vitesse uniforme, décroît à mesure que N grandit. On en conclut que le “rhéocristal” se maintient dans la limite thermodynamique, ce qui peut se comprendre si on pense que les disques sur les diagonales qui se structurent en un réseau carré permettent sa mise en rotation comportent un nombre sous extensif de disques. On peut alors en déduire que la plage de fraction surfacique dans laquelle le cristal est stable devient asymptotiquement petite lorsque $N \rightarrow \infty$.

4.5 Conclusion

A l'occasion de l'étude expérimentale de la cristallisation des disques polaires, nous avons atteint des fractions surfaciques $\Phi \sim 0.84$ pour des disques placés dans la couronne en forme de fleur. Nous avons conclu que les disques polaires forment une phase de liquide de clusters en perpétuelle évolution. Dans ce chapitre, nous avons étudié la densité de défauts topologiques à l'origine de la fonte des cristaux en fonction de la fraction surfacique et nous avons tenté de caractériser leur dynamique. Si l'on essaye de se concentrer uniquement sur les domaines cristallins, nous avons vu que des défauts de type dislocations sont très présents. Par ailleurs, ces défauts sont fortement mobiles. Les domaines cristallins de disques SPP sont donc très excitables. Cette dynamique de défauts contraste fortement avec celle observée dans un cristal de disques ISO et laisse penser que c'est une des causes de la fonte des domaines cristallins. Ces observations nous ont conduit à réaliser des expériences à très haute fraction surfacique ($\Phi \sim 0.88$) proche de l'arrangement hexagonal compact ($\Phi = \frac{\pi}{2\sqrt{3}}$). Expérimentalement, on observe que le cristal de disques SPP se maintient s'il n'est pas frustré et que la taille du système le permet. Par contre retirer des disques génère de la frustration. On observe alors deux régimes dans lesquels on mesure de l'ordre hexagonal, mais dont les dynamiques diffèrent. Le premier correspond à la présence d'une "goutte", c'est à dire une zone qui condense l'ensemble des défauts, qui se déplace de façon isotrope et très rapide dans l'hexagone, beaucoup plus rapidement qu'une simple lacune qui aurait diffusé dans le cristal. De plus, les défauts contenus dans la "goutte" ne se dispersent quasiment pas. Le passage de la "goutte" change le réseau de voisinage et les particules diffusent. Le second régime est obtenu lorsque l'on retire davantage de disques, les disques se déplacent alors majoritairement le long des bords de l'hexagone, développant une rotation d'ensemble. Ainsi, dans ce régime, la structure reste cristalline, mais coule : on l'appelle "rhéo-cristal". Enfin, des simulations numériques du modèle des disques polaires montrent un comportement en tout point similaire. L'étude des effets de tailles finies indique que ce régime de cristal qui coule resterait présent dans la limite thermodynamique. Finalement dans cette limite, le cristal statique n'existe pas.

Chapitre 5

Dopage

Nous avons vu dans les chapitres précédents que les disques isotropes (ISO) cristallisent pour des fractions surfaciques Φ supérieures à 0.72. En revanche, les disques polaires (SPP) ne cristallisent pas : les régions cristallines qui se forment dans les phases denses fondent sans cesse. La fonte est induite par des défauts très mobiles qui se propagent facilement dans la structure.

On peut alors se demander si la présence de particules SPP au sein d'un cristal d'ISO pourrait le faire fondre. Plus précisément, des disques SPP peuvent-ils induire la nucléation de défauts ? Si c'est le cas, ces défauts sont-ils mobiles et se propagent-ils dans le cristal de sorte qu'il fonde ?

Pour répondre à ces questions, nous avons réalisé deux séries d'expériences de dopage. Par dopage, nous entendons le fait d'incorporer quelques pourcents (6% maximum) de disques SPP dans un cristal d'ISO préalablement "équilibré".

Lors de la première série d'expériences, un joint de grains s'est formé au cours de l'équilibration du cristal d'ISO pur, marquant la frontière entre deux régions cristallines d'orientations différentes. La formation spontanée d'un tel joint de grains a été pour nous l'occasion d'étudier comment les disques polaires se couplent avec celui-ci. En effet, peu de temps avant nos expériences, une étude numérique réalisée par l'équipe de M. Dijkstra [89] a montré comment des particules actives modifient la croissance et la dynamique de joints de grains dans un polycristal composé de particules passives dopé à hauteur de 1% environ. Il nous a donc paru intéressant de tirer profit d'une situation similaire dans nos expériences, pour confronter ces observations numériques à notre système expérimental.

Au cours de cette discussion nous verrons, que deux disques SPP côte-à-côte produisent un effet différent d'un disque SPP isolé dans le cristal d'ISO. Ceci nous a amené à conduire une deuxième série d'expériences. Au cours de celle-ci, nous avons étudié l'impact sur le cristal d'ISO d'un groupe de particules SPP mises côte-à-côte, dont nous avons fait varier la taille.

Dans une première partie, nous commencerons par rappeler les principaux résultats et observations numériques faits par l'équipe de M. Dijkstra, avant de les confronter à nos propres résultats dans une deuxième partie. Enfin, dans une troisième partie, nous verrons comment le cristal de disques isotropes répond à la présence de disques polaires isolés ou à l'inverse regroupés dans une même zone du cristal.

Pour chacun des résultats que nous montrerons, nous rappellerons au préalable les protocoles expérimentaux que nous nous sommes fixés.

5.1 Expériences numériques réalisées par M. Dijkstra

Les auteurs de l'article [89] simulent un cristal de N particules Browniennes à la température β^{-1} à deux dimensions. Les particules interagissent via un potentiel purement répulsif, de type Weeks Chandler Anderson (WCA).

$$\beta U_{WCA}(r) = \begin{cases} 4\beta\epsilon\left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \frac{\sigma}{r}\right]^6 + \frac{1}{4}, & r/\sigma \leq 2^{1/6}, \\ 0, & r/\sigma > 2^{1/6}, \end{cases} \quad (5.1)$$

avec σ le diamètre des particules, et $\beta\epsilon = 40$, l'échelle d'énergie.

Leur étude consiste à regarder l'évolution d'un polycristal préalablement équilibré, et composé de plusieurs domaines d'orientations différentes bien distincts. Les auteurs s'intéressent à son évolution, d'une part dans le cas où toutes les particules sont passives, et d'autre part, dans le cas où une fraction $\alpha = N_\alpha/N$ de particules passives prises au hasard a été changée en particules actives. Les particules actives et passives interagissent également *via* le potentiel (5.1).

Par ailleurs, les particules actives sont modélisées par des ABP. Elles sont dotées d'une propulsion f le long d'un vecteur $\hat{\mathbf{u}}_i$, présentant une diffusion rotationnelle de coefficient $D_r = 3D_0/\sigma^2$, où D_0 est le coefficient de diffusion thermique des particules passives. On rappelle que ces particules ne présentent pas d'alignement effectif, contrairement aux disques SPP [21, 94]. Le principal résultat de leur simulation est résumé sur la figure (5.1), issue de l'article [89]. Sur la figure du haut, les auteurs montrent en parallèle l'évolution d'un cristal équilibré composé de plusieurs domaines, quand aucune particule n'a été désignée active (rangée supérieure), et quand une fraction $\alpha = 0.0076$ de particules passives a été désignée active (rangée inférieure). Lorsqu'aucune particule active n'est présente, les domaines se maintiennent. Les auteurs notent néanmoins que la taille des domaines, et donc celle des joints de grains qui les séparent, fluctuent en raison des fluctuations thermiques. En revanche, la présence même infime de quelques particules actives permet le réarrangement des domaines en un seul.

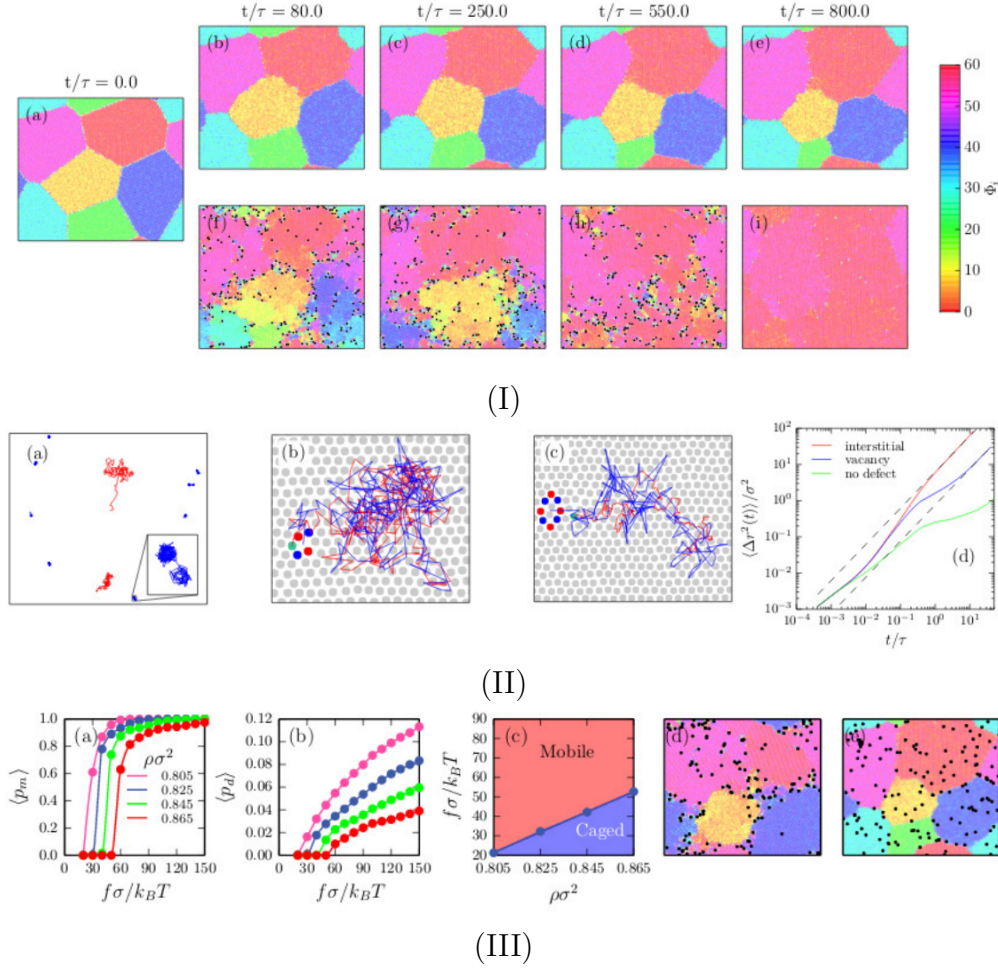


FIGURE 5.1 – **Simulations numériques de particules ABP dans un polycristal.** extrait de [89]. L'échelle de temps de la simulation est fixée à $\tau = \sigma^2/D_0$. (I) : le code couleur indique l'orientation locale des particules. (I)-(a) : état initial d'un cristal de particules passives composé de domaines orientés différemment. Haut : évolution de ce polycristal. Bas : évolution du polycristal dont moins de 1% de particules passives ont été remplacées par des particules actives ABP (points noirs), avec une force de propulsion $f\sigma/k_B T = 90$. (I)-(i) : état du système lorsque l'activité des particules actives a été éteinte. Le nombre de particules est $N = 39446$, pour une densité de 0.84. (II) : (a) : quelques trajectoires de particules actives à une densité de 0.82, de propulsion $f\sigma/k_B T = 50$, sur une échelle de temps $t/\tau = 100$. La rouge correspond à une particule mobile et la bleue à une particule piégée. (b) et (c) : trajectoire de particule active mobile en rouge qui se sert d'une lacune (b) (trajectoire bleue) ou d'un défaut interstitiel (c) (trajectoire bleue) dans la structure pour avancer. La particule active est représenté en vert. Les particules passives correspondants à des défauts sont en bleu et en rouge. (d) : Déplacement quadratique moyen $\langle \Delta r^2(t) \rangle / \sigma^2$ d'une particule active couplée à une lacune (bleu), à un défaut interstitiel (rouge) ou piégé (vert). (III) : (a) : nombre moyen de particules actives mobiles ($\langle p_m \rangle$) en fonction de la force de propulsion ($f\sigma/k_B T$) et de la densité. (b) : nombre de défauts en fonction de la propulsion et de la densité. (c) : diagramme d'état montrant où les particules actives sont mobiles ou piégées. (d) : régime mobile. $f\sigma/k_B T = 90$ et une densité de 0.845. On observe du *coarsening* et les particules actives s'accroissent au niveau des joints de grains. (e) : dans le régime piégé. Les particules actives restent dans leur domaine et ne se déplacent pas. Le cristal évolue de la même façon que dans le cas où le cristal n'est pas dopé. Pour ces simulations $\alpha = 0.004$.

Comme on le voit sur la figure centrale, les particules actives immergées dans une région cristalline génèrent des défauts dans la structure. Elles s’y couplent fortement et se déplacent au sein du cristal, entraînant la réorganisation de sa structure.

Enfin, les auteurs ont exploré une partie de l’espace des phases en modifiant la force de propulsion des particules et la densité du cristal (figure du bas). En mesurant pour différentes densités la proportion de particules actives qui bougent en fonction de l’intensité de la propulsion, et la proportion de défauts dans la structure à ces mêmes densités, ils observent une transition entre un régime dans lequel la structure ne présente aucun défaut et les particules actives ne bougent pas, et un régime dans lequel des défauts apparaissent et les particules bougent. Le seuil du passage d’un régime à un autre se décale vers les plus hautes activités, à mesure que la densité augmente, ceci marque d’un couplage fort entre les particules actives et les défauts de la structure cristalline.

Les auteurs en concluent que des particules actives de type ABP permettent de supprimer des joints de grains, conduisant à la formation d’un cristal unique. Cependant, lorsque le cristal n’est plus composé que d’un unique domaine, les particules actives continuent à générer des défauts. En désactivant la propulsion des particules actives, les défauts qu’elles génèrent disparaissent, laissant place à un cristal parfaitement équilibré. Grâce au dopage, les auteurs proposent donc une méthode intéressante pour produire des phases cristallines bien ordonnées, constituées d’un seul domaine.

L’objectif de la partie qui suit est de confronter ces conclusions à notre système expérimental.

5.2 Couplage entre les disques polaires et un joint de grains

Nous commençons par rappeler le protocole expérimental que nous nous sommes fixés. Nous expliquons notamment notre méthode pour changer une particule passive (ISO) par une particule active (SPP), puis nous passons à l’étude des différentes expériences réalisées pas à pas.

Protocole expérimental.

Tout d’abord, soulignons que pour toutes les expériences présentées dans ce chapitre, nous avons fixé la couronne en forme de fleur sur le plateau vibrant de sorte de pouvoir retirer la vitre confinant les disques en hauteur sans perturber la structure du système entre deux cycles de vibrations. Dans cette configuration, il est facile de remplacer des disques ISO par des SPP comme nous le décrivons ci-après.

Nous avons commencé par construire un cristal d’ISO pur, constitué de 3033 disques,

N_{ISO}	3033	3001	2970	2941
N_{SPP}	0	32	63	92
$100 * \frac{N_{SPP}}{N_{ISO}}$	0%	1%	2%	3%
τ_{acq}	10 minutes	10 minutes	10 minutes	10 minutes
τ_{eq}	10 minutes	5 minutes	5 minutes	2 minutes

TABLE 5.1 – Configurations des quatre expériences en présence d’un joint de grains.

correspondant à une fraction surfacique $\Phi = 0.79$. Pour cela, les disques ISO sont rassemblés au centre de l’arène florale, puis avons laissé le système équilibrer pendant 10 minutes avant de procéder à une acquisition de 10 minutes à une fréquence de 30 Hz. Pour toutes les expériences, l’accélération du vibreur a été fixée à $\Gamma = 2.4$, pour une fréquence de 95 Hz.

En se formant, le cristal a développé un joint de grains qui s’est maintenu durant tout le temps de l’acquisition. A ce stade, nous avons commencé à doper le système de la façon suivante : nous avons soigneusement prélevé des disques ISO sélectionnés au hasard, que nous avons remplacés par des disques SPP.

Pour toutes les expériences qui ont suivi, nous nous étions fixés comme objectif de laisser un temps d’équilibration de 5 minutes suivant l’échange des particules, avant d’acquérir des images pendant 10 minutes à une fréquence de 30 Hz (soit 17999 images enregistrées).

Dans le tableau 5.1, nous présentons les quatre configurations expérimentales réalisées à la suite, avec le nombre de particules SPP introduites et les durées d’équilibrations τ_{eq} et d’acquisitions τ_{acq} . Afin de comparer au mieux nos résultats avec ceux des simulations de M. Dijkstra [89], nous avons mesuré le coefficient de diffusion $D_0 = 0.5d^2/\delta_t$ d’un disque isotrope dans un régime très dilué, où δ_t est le temps qui sépare deux images consécutives. L’analogie du temps microscopique τ de ses simulations dans nos expériences est $\tau_{micro} = d^2/D_0 = 2\delta_t$. Pour nous, la notation τ mesure un écart d’images. Nous l’utilisons comme unité de temps pour étudier nos résultats. Nous retrouverons notamment cette unité temporelle dans la prochaine sous-partie, dans le cadre de la présentation de la dynamique des déplacements.

5.2.1 Dynamique globale du joint de grains

Sur la figure (5.2-a), nous montrons une carte sur laquelle les disques sont représentés par leur cellule de Voronoï à l’instant initial. Les cellules sont codées selon la valeur absolue du champ local $\Psi_{||\delta||}$. L’échelle de couleurs est indiquée sur la carte. Le joint de grains s’identifie à la ligne continue de cellules dans une couleur bleutée,

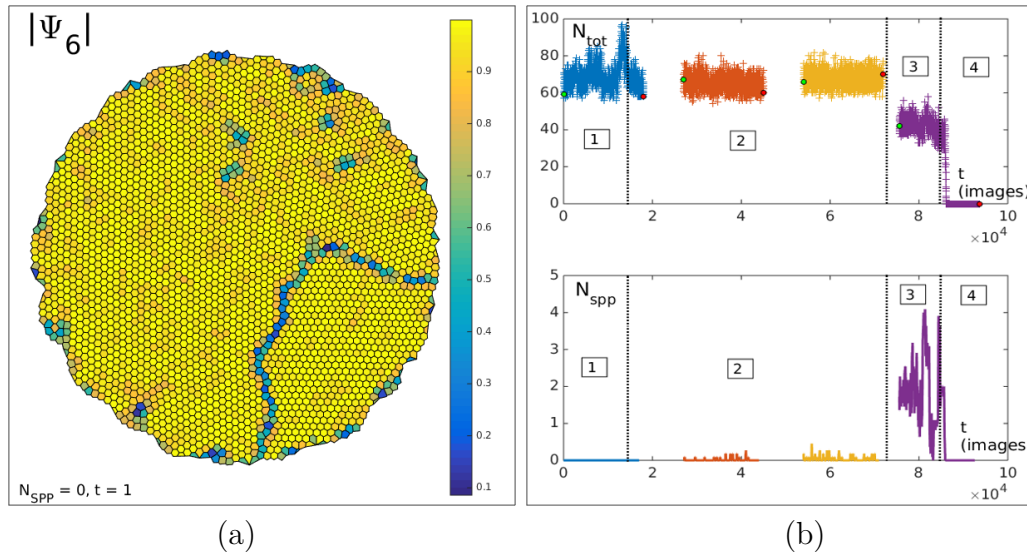


FIGURE 5.2 – **Dynamique du joint de grains.** (a) : Carte des cellules de Voronoï au début de l’acquisition. Les cellules sont coloriées selon l’intensité du champ $\Psi_{\parallel 6\parallel}$ indiquée sur la colormap. (b) : (Haut) Taille du joint de grains en nombre de disques au cours du temps. Chacune des quatre expériences est représentée par une couleur différente. Les points verts et rouges représentent le début et la fin de chaque expérience. Quatre régimes durant lesquelles la dynamique du joint de grains est différente sont indiqués. (Bas) Nombre de disques SPP dans le joint de grains, moyenné sur 100 pas de temps.

où l’ordre orientationnel est faible. On vérifie facilement qu’il s’agit bien d’un joint de grains : les orientations des domaines de part et d’autre du joint sont différentes. Nous avons ré-exploité le code de *clustering* écrit dans le cadre de la cristallisation (chapitre 3) pour construire à tout instant le joint de grains. A chaque instant t , nous identifions les particules qui ont un champ $\Psi_{\parallel 6\parallel} < 0.5$. Puis, nous regroupons parmi elles celles qui sont voisines au sens de la triangulation de Delaunay. Nous obtenons ainsi à chaque instant une liste de clusters de particules. Parmi ceux-ci, quelques uns correspondent au joint de grains, qu’il est nécessaire de réunir. Par ailleurs, nous ne pouvons garantir qu’à chaque instant tous les disques *a priori* visibles dans le joint de grains aient leur $\Psi_{\parallel 6\parallel} < 0.5$.

Nous avons donc décidé d’identifier manuellement le joint de grains à l’instant initial, c’est-à-dire de lister les clusters qui en font véritablement partie et de déduire les clusters qui font partie du joint de grains aux instants suivants de la façon suivante. Parmi l’ensemble des clusters obtenus à l’instant $t + 1$, nous retenons ceux faisant partie du joint de grains, comme ceux ayant une intersection non vide (en terme de labels de disques) avec les clusters qui composent le joint de grains à l’instant t . Nous sommes alors en mesure de suivre l’évolution de la taille (en nombre de disques) du joint de grains et le type de disques qui le composent.

La figure (5.2-b) montre la taille du joint de grains et le nombre de SPP qu'il contient au cours du temps. On peut identifier trois régimes dynamiques différents. Au cours du premier régime, la taille du joint de grains fluctue fortement et le joint de grains ne contient pas de disque SPP. Le second régime se caractérise par l'absence de fluctuation notable de la taille du joint de grains, malgré la présence ponctuelle de quelques disques SPP en son sein. Au cours du troisième régime, on observe simultanément que plusieurs disques SPP intègrent le joint de grains et que la taille de ce dernier diminue fortement. Enfin, la taille du joint de grain subit une chute abrupte, qui conduit à sa résorption totale. On remarque aussi que la taille du joint de grain a déjà diminué fortement entre la fin de la troisième expérience et le début de la quatrième expérience. En fait, le joint de grains voit sa taille diminuer dès le début de la période d'équilibration qui sépare les expériences. C'est pour cette raison que nous l'avons raccourcie à deux minutes, de façon à capturer la dynamique du joint de grains.

Ces observations soulèvent plusieurs questions. Pourquoi la taille du joint de grains fluctue-t-elle autant au cours du premier régime? La décroissance de la taille du joint de grains semble être corrélée à la présence de SPP quasi continue en son sein. Faut-il y voir un rapport de cause à effet? Enfin, peut-on identifier la cause ou le mécanisme responsable de la disparition complète du joint de grains? Par la suite, nous allons étudier successivement les trois régimes identifiés ci-dessus et la disparition du joint de grains en vue de répondre à ces questions.

Premier régime : fin de l'équilibration

Rappelons qu'au cours de la première expérience, aucun disque SPP n'a été déposé dans le cristal. Pour un cristal de disques ISO équilibré, nous nous attendrions à ce que le joint de grains fluctue sur de petites distances. Pourtant, l'évolution de la taille du joint de grains en fonction du temps montre d'importantes fluctuations et même plus importantes que celles présentes au cours des deux expériences suivantes.

Pour tenter de comprendre cette dynamique très fluctuante de la taille du joint de grains, nous représentons l'état du système aux instants initial et final de la première expérience représentés par des cartes des cellules de Voronoï codées en fonction de la valeur de $\Psi_{\parallel 6\parallel}$ (figures (5.3-a) et (5.3-c)). De plus, sur la figure (5.3-b) nous représentons une carte de la position des disques à l'instant initial, sur laquelle nous avons représenté en bleu les disques définissant le joint de grains à l'instant initial et en vert ceux qui ont été détectés au moins une fois au cours du temps dans le joint de grains. On remarque que la forme du joint de grains a fortement évolué au cours du temps. Plus précisément, la partie basse du joint de grains s'est peu déplacée et de façon symétrique par rapport à sa position initiale, tandis que la partie haute du joint de grains a balayé une zone assez large. Ces images, qui

montrent les fluctuations spatiales du joint de grains, confirment les fluctuations de sa taille.

Par ailleurs, nous représentons sur les figures (5.3-d) et (5.3-e) les cartes des cellules de Voronoï codées selon l'orientation du champ local $\arg(\Psi_6)$ respectivement au début et à la fin de l'expérience. Au début de l'expérience, nous remarquons la présence de presque trois domaines différents, un premier en rouge, un second en bleu et un troisième dont l'orientation est moins bien définie comme en témoigne la large coexistence de plusieurs couleurs. A l'instant final, on observe finalement une structure qui se scinde uniquement en deux domaines bien distincts.

Ces images permettent de comprendre l'origine des fluctuations observées. La configuration cristalline initiale n'était pas réellement équilibrée, puisque le joint de

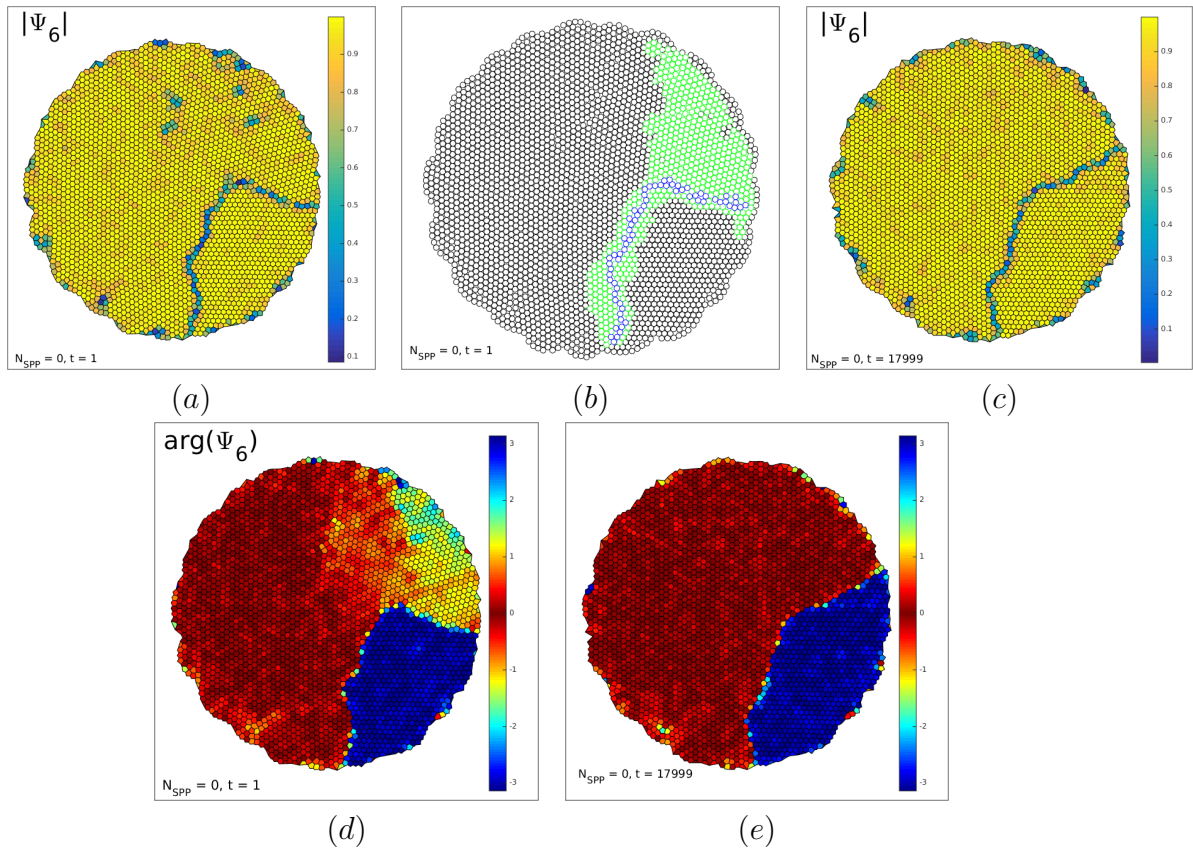


FIGURE 5.3 – **Régime d'équilibration.** (a),(c) : Etat du joint de grains au début et à la fin de la première acquisition. Cartes des cellules de Voronoï coloriées par l'intensité du champ $\Psi_{||6||}$. (b) : Positions des disques à l'instant initial. Les disques bleus représentent le joint de grains à cet instant. Les disques verts représentent tous les disques qui ont participé aux joint de grains au cours du temps. (d),(e) : Cartes des cellules de Voronoï coloriées selon la phase du champ complexe local Ψ_6 aux instants initiaux et finaux.

grains n'avait pas atteint une configuration durable (métastable). Le premier régime auquel nous assistons est donc la fin de cette phase d'équilibration. Ceci se confirme par le fait que les fluctuations ne réapparaissent pas tout au long du second régime.

Second régime : stabilité du joint de grains

Le second régime débute au cours de la fin de la première expérience et se termine à la fin de la troisième expérience. Tout au long de ce régime, on observe une persistance de la taille du joint de grains, et des faibles fluctuations de sa taille. Comme précédemment, nous représentons sur les figures (5.4-a) et (5.4-c) les états initiaux et finaux du joint de grains, ainsi que la position des disques détectés au moins une fois au cours du temps dans le joint de grains sur la figure (5.4-b). Nous observons en effet, une stabilité de la position spatiale du joint de grains, qui ne s'est déplacé que sur des petites distances et de façon symétrique par rapport à sa position initiale. Le mouvement du joint de grains laisse supposer que les disques SPP n'ont joué aucun rôle.

Ceci est confirmé par l'étude de la dynamique des disques SPP. Les figures (5.5-a) et (5.5-c) représentent des cartes de Voronoï aux instants initiaux des deuxième et troisième acquisitions, sur lesquelles nous indiquons les disques SPP par des pastilles de couleurs allant du bleu au rouge selon leur proximité avec le joint de grains. En

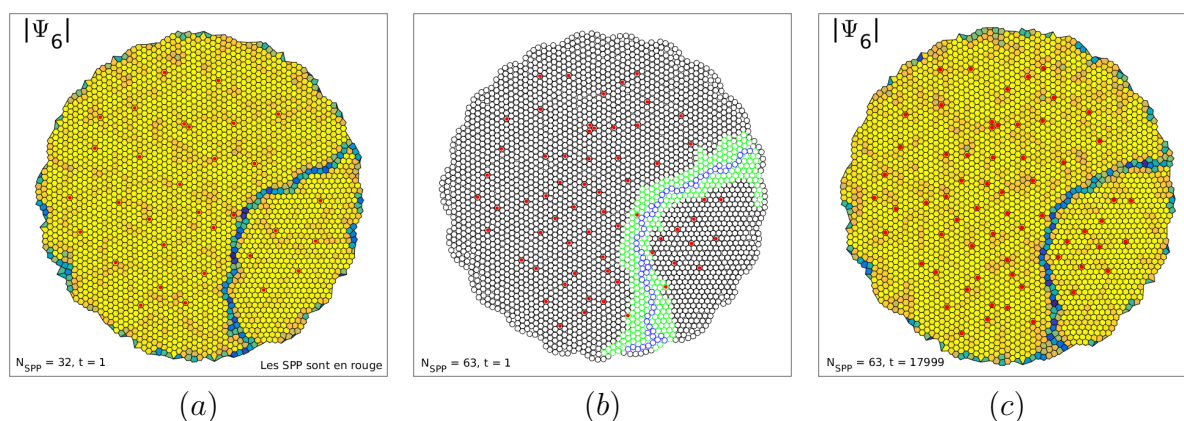


FIGURE 5.4 – **Stabilité du joint de grains.** (a),(c) : Etat du joint de grains au début de la deuxième et à la fin de la troisième acquisition. Cartes des cellules de Voronoï coloriées par l'intensité du champ $|\Psi_{|6||}$. Les disques SPP sont labélisés par des points rouges. (b) : Positions des disques au début de la troisième acquisition. Les disques bleus représentent le joint de grains à cet instant. Les disques verts représentent tous les disques qui ont participé au joint de grains au cours de la troisième acquisition.

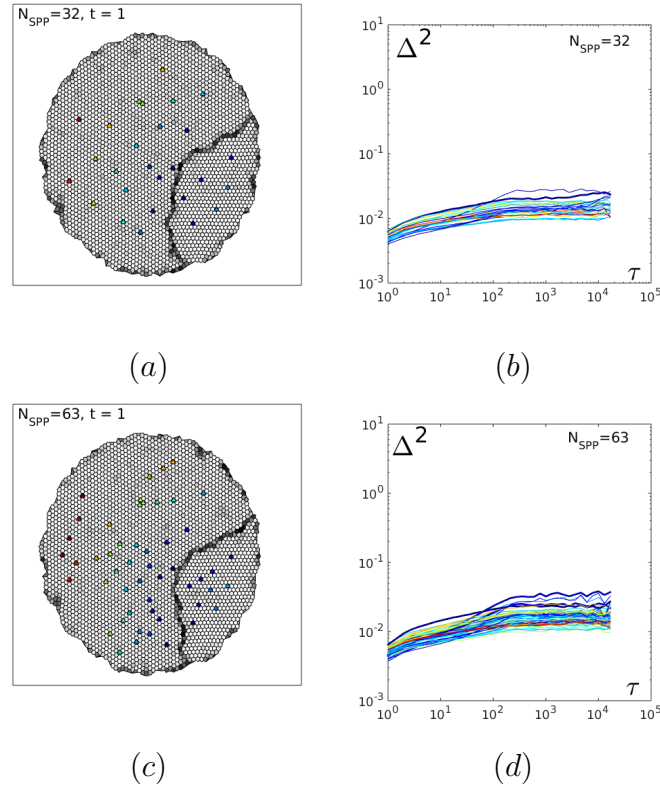


FIGURE 5.5 – **Stabilité du joint de grains.** (a) : Déplacements quadratiques moyens des 32 disques SPP de la deuxième acquisition, coloriés par leur proximité au joint de grains tel qu’indiqué par leur couleur sur le panel (b). (c),(d) : même chose pour la troisième acquisition avec 63 disques SPP.

parallèle, sur les figures (5.5-b) et (5.5-d), nous représentons les déplacements quadratiques moyens des disques SPP, codés selon le même code couleur. Les courbes en gras correspondent aux disques SPP détectés au moins une fois au cours du temps dans le joint de grains. Toutes les courbes tendent vers un plateau, indiquant que les disques ne se déplacent pas au delà d’un dixième de diamètre et vibrent donc dans leur cage. Les rares particules qui ont un déplacement quadratique moyen très légèrement supérieur aux autres, correspondent à des disques SPP proches du joint de grains.

En conclusion, dans ce régime les disques SPP n’altèrent pas la stabilité du cristal lorsqu’ils sont placés de manière isolée les uns par rapport aux autres.

Troisième régime : Retrait et disparition du joint de grains

A l’issue de la troisième acquisition, nous avons substitué 29 disques ISO par 29 disques SPP. En outre, trois d’entre eux ont été positionnés à l’intérieur du

joint de grains. Dès les premières minutes de vibrations, le joint de grains a commencé à se déplacer significativement, c'est pourquoi nous avons lancé l'acquisition après 2 minutes seulement. Malgré cela, on constate un fort déplacement du joint de grains entre le dernier instant de la troisième acquisition (figure 5.6-a) et le premier instant de la quatrième (figure 5.6-b). Au cours de ce régime, on observe sur la figure (5.6-c) que l'ensemble des grains compris entre le joint de grains à l'instant initial et le bord de la cellule ont été visités par le joint de grains lors de son retrait. Pour montrer le mouvement spatial du joint de grains en fonction du temps, nous représentons sur la figure (5.6-d) une carte des cellules de Voronoï zoomée au niveau du joint de grains à l'instant initial, sur laquelle on a superposé les positions des

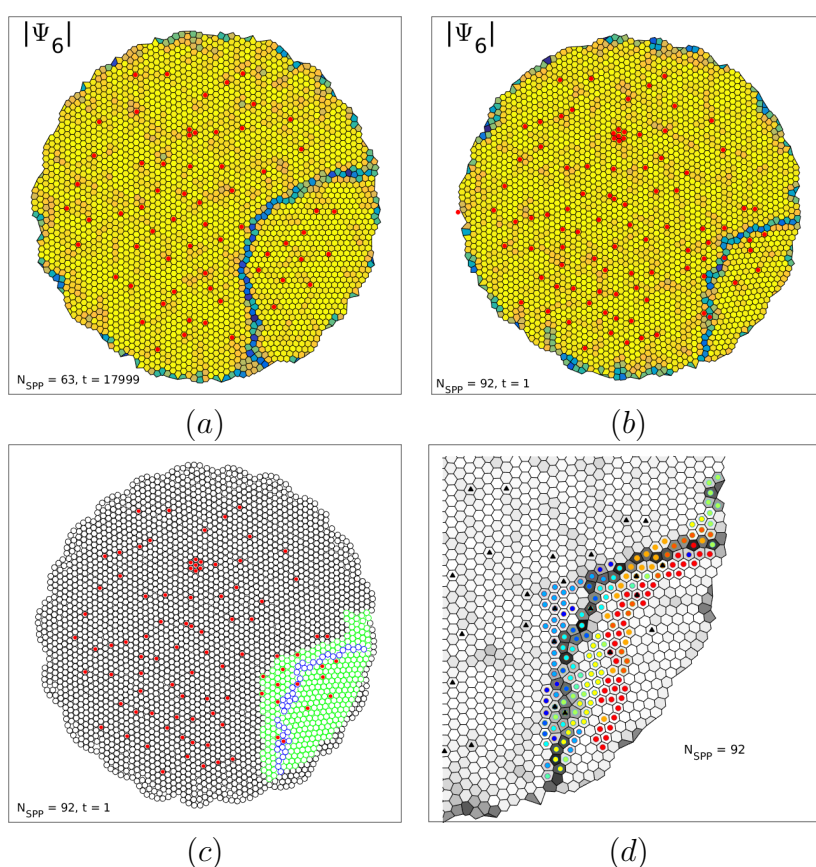


FIGURE 5.6 – **Retrait du joint de grains.** (a),(b) : Etat du joint de grains à la fin de la troisième acquisition et au début de la quatrième. Cartes des cellules de Voronoï coloriées par l'intensité du champ $\Psi_{||6||}$. Les disques SPP sont labélisés par des points rouges. (c) : Positions des disques au début de la quatrième acquisition. Les disques bleus représentent le joint de grains à cet instant. Les disques verts représentent tous les disques qui ont participé aux joint de grains au cours de la troisième acquisition. (d) : positions à 10 instants successifs (du bleu au rouge) séparées par 1000 images. Les disques SPP sont représentés par des triangles noir.

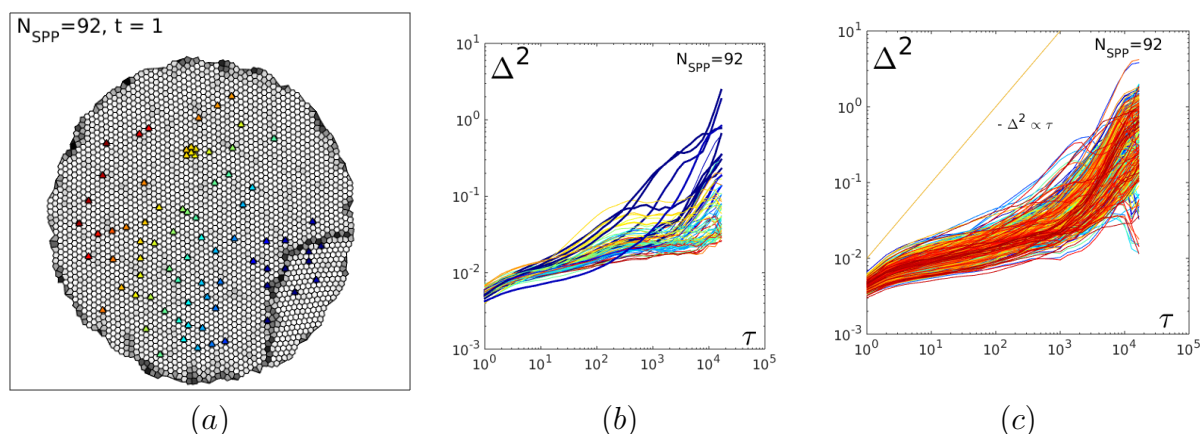


FIGURE 5.7 – **Retrait du joint de grains.** (b) : Déplacements quadratiques moyens des 92 disques SPP de la quatrième acquisition, coloriés par leur proximité au joint de grains tel qu’indiqué par leur couleur sur le panel (a). (c) : Déplacements quadratiques moyens des particules ISO détectées au moins une fois au cours du temps dans le joint de grains au cours de la quatrième acquisition

particules du joint de grains aux différents temps $t \in [1, 1001, 2001, \dots, 10001]$, représentés par des ronds colorés du bleu au rouge. Les particules appartenant au joint de grains au même instant partagent la même couleur. Les SPP sont indiquées par les triangles noirs. On observe qu’en se rétractant, le joint de grains implique les disques SPP présents sur son parcours. Ceci explique l’accroissement du nombre de SPP moyen au cours de ce régime. De ce point de vue, ce n’est pas l’accroissement du nombre moyen de disques SPP au sein du joint de grains qui est la cause de sa mobilité, mais plutôt le contraire.

La figure (5.7) confirme cette observation. On voit en effet que les disques SPP à proximité ou impliqués dans la dynamique du joint de grains se déplacent au delà de leur cage. Mais on observe que les disques ISO visités au moins une fois par le joint de grains au cours de son retrait bougent tout autant.

Disparition abrupte du joint de grains

Nous continuons nos observations en décrivant l’événement qui produit la disparition brutale du joint de grains. Sur les trois images de la figure (5.8) nous représentons la position des disques en blanc s’ils ont 6 voisins, en bleu s’ils en ont 7 et en vert s’ils en ont 5. Le joint de grains peut être assimilé à la ligne que forme ces défauts.

On observe sur l’image centrale la formation d’une ligne de cisaillement issue du bord, le long de laquelle le réseau hexagonal est temporairement remplacé par un réseau carré, comme indiqué par la flèche noire sur les figures (5.8-b) et (5.8-c).

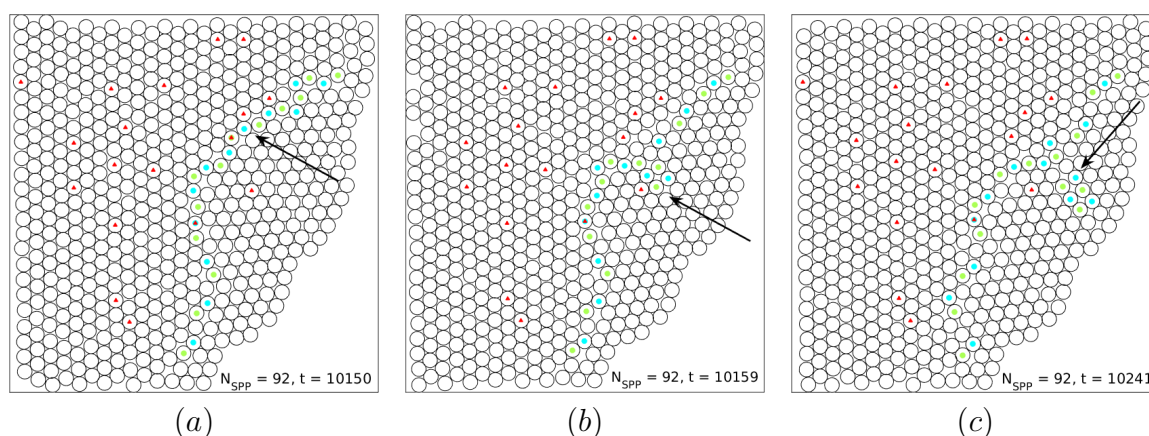


FIGURE 5.8 – **Chute abrupte du joint de grains.** En (a) et (c) on représente les instants qui précèdent et qui suivent l’instant de la figure (b) où une dislocation issue du bord provoque la brisure du joint de grains conduisant à sa disparition brutale. La flèche noire indique le lieu où se produit la brisure.

Cette dilatation provoque la brisure du joint de grains, indiquée par la flèche. Par la suite, plusieurs petites lignes de défauts ouvertes se sont retrouvées dans le cristal, qui a facilement réussi à les expulser. Sur ces images on voit que la formation de cette zone de dilatation semble résulter d’un couplage entre le bord et le joint de grains.

En résumé, à ce stade de nos observations et contrairement à que nous laissait penser la corrélation entre la présence de disques SPP au sein du joint de grains et son retrait, nous ne pouvons pas vraiment pointer un comportement spécifique des disques SPP, qui ne semblent pas avoir joué un rôle déterminant. Ceci semble aller à l’encontre des conclusions des auteurs de l’article [89]. Cependant, il n’est pas exclu que la mise en mouvement du joint de grains ait été induite par l’insertion des trois disques SPP en son sein. C’est ce que nous nous proposons d’investiguer à présent.

5.2.2 Analyse des mécanismes locaux

Structure et dynamique locales du joint de grains.

Sur les figures (5.9-a) et (5.9-c), nous représentons deux instantanés du joint de grains au cours de la deuxième et de la quatrième expérience. Sur ces cartes figurent la position des disques dans la zone du joint de grains. Ceux ayant 5 voisins sont en bleu et ceux ayant 7 voisins sont en vert. Les disques SPP sont, quant à eux, repérés par des triangles rouges. On observe alors, dans l’espace réel, que le joint de grains peut être assimilé à une ligne constituée de la succession de particules ayant 5 et 7 voisins. On remarque une différence entre ces deux instantanés : sur la

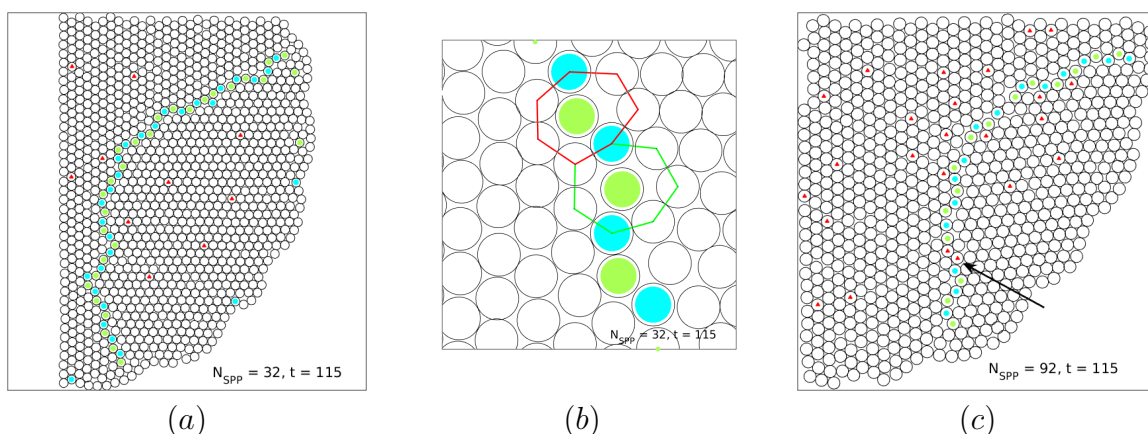


FIGURE 5.9 – **Structure et dynamique locales du joint de grains.** (a),(c) : Joint de grains observé au cours de la seconde et de la quatrième acquisition. Les particules ayant respectivement 5, et 7 voisins, sont coloriées en bleu, et en vert. Les disques SPP sont pointés par un triangle rouge. (b) : zoom sur une portion du joint de grains sur laquelle figurent deux cages (en bleu et en vert) entourant deux particules dotées de 7 voisins.

figure (5.9-a), aucun SPP ne se trouve dans le joint de grains et ce dernier forme une ligne bien continue, alors, que sur la figure (5.9-c), quelques SPP sont très proches du joint de grains et en particulier deux d'entre eux sont côte-à-côte (indiqués par la flèche noire) et présents dans le joint de grains. Ces deux disques SPP semblent rompre la continuité du joint de grains. En effet, nous pouvons voir que ces deux disques SPP sur cet instantané ont 6 voisins.

Cette discontinuité est-elle due à la présence des disques SPP côte-à-côte? Dans quelle mesure nuit-elle à la stabilité du joint de grains? Dans quel cas un joint de grains peut-il se rompre?

Si l'on zoom dans le cœur du joint de grains (figure 5.9-b), on s'aperçoit que celui-ci est composé de cages, constituées de 8 disques ($7 + 1$). Sept disques sont situés à la périphérie d'une cage, piégeant un disque en son sein. La position du joint de grains fluctue du fait des fluctuations des positions de ces cages. Le mouvement d'une cage a lieu lorsqu'une particule située sur la périphérie d'une cage saute à l'intérieur de celle-ci, ce qui a pour conséquence de laisser une place vacante derrière cette particule et donc de former une nouvelle cage. L'évolution du joint de grains par « saut de cage » conduit à des ruptures intermittentes, autrement dit à des discontinuités du joint de grains. Même au cours de la seconde expérience, nous observons des instants où le joint de grains est marqué par ces discontinuités. Cependant, la durée pendant laquelle le joint de grains est discontinu varie nettement entre la seconde et la quatrième expérience. Ces durées sont liées à la fréquence à laquelle les cages se déplacent, et à la vitesse à laquelle elles le font. Or d'après nos observations visuelles, les cages fluctuent beaucoup moins souvent dans le cas de la seconde expérience que

dans le cas de la quatrième. En particulier, dans cette dernière, les cages fluctuent très souvent là où les disques SPP se retrouvent côte-à-côte.

Par ailleurs, concernant le mouvement des disques SPP, on a l'impression qu'ils ne vibrent pas de la même façon que les disques ISO. Même lorsque les disques SPP sont entourés uniquement de disques ISO, et donc malgré le bruit induit par ces derniers et le peu d'espace disponible, les particules SPP montrent une légère persistance dans le sens de leur déplacement. De plus, on remarque une différence dans le comportement des disques SPP, selon qu'ils soient seuls ou en binômes côte-à-côte.

Disques SPP seuls :

Piégée dans une cage, une particule SPP seule, ne semble pas altérer la façon dont bouge une cage, comme précisé plus haut. Par contre, la fréquence à laquelle une cage se déplace augmente légèrement avec la présence d'une seule SPP. En effet, dès qu'en a la possibilité, et si son orientation le lui permet, une particule SPP saute facilement dans l'espace disponible.

Disques SPP en binômes côte-à-côte :

Dans cette configuration, la fréquence des sauts de cages semble supérieure. De plus, en raison de leur vibration particulière, les disques SPP modifient fortement la forme locale de la cage. La persistance est plus visible lorsqu'ils sont à deux, comme si les disques profitaient mutuellement de leur persistance pour se frayer des chemins.

J'aimerais souligner que ces observations visuelles peuvent être entachées d'une sur-estimation du comportement des disques SPP vis-à-vis des disques ISO. Néanmoins, nous pouvons supposer que les disques SPP ont la possibilité d'accroître la fréquence des sauts de cages. De plus, dans une configuration où ils se situent côte-à-côte, les disques ont tendance à briser plus facilement la continuité de la ligne.

Afin d'être plus quantitatifs, nous montrons dans la suite de cette partie les distributions des densités locales et des déplacements des disques SPP et ISO, selon qu'ils sont dans le joint de grains ou à l'extérieur de celui-ci.

Distributions des densités locales. Les résultats des mesures des distributions de la densité locale, définies comme a/A , avec a et A , respectivement l'aire d'un disque et celle de la cellule de Voronoï pour la deuxième et la quatrième expérience sont représentées sur la figure 5.10. Les figures se scindent en fonction de la présence exclusive des disques dans le solide (*bulk*) au cours du temps (figures (5.10-a) et (5.10-b)), ou s'ils ont été au moins une fois détectés dans le joint de grains (figures (5.10-c) et (5.10-d)).

Les distributions des densités de disques (figures (5.10-a) et (5.10-b)) du *bulk*, qu'ils soient SPP ou ISO, sont équivalentes pour les deux expériences. Elles sont centrées sur 0.85. On pourrait à la rigueur remarquer une légère différence, en ce que la

distribution pour les disques SPP est plus piquée et se décale légèrement vers les plus grandes densités. Si ce décalage est significatif, on pourrait en déduire que les SPP se rapprochent davantage de leurs particules voisines.

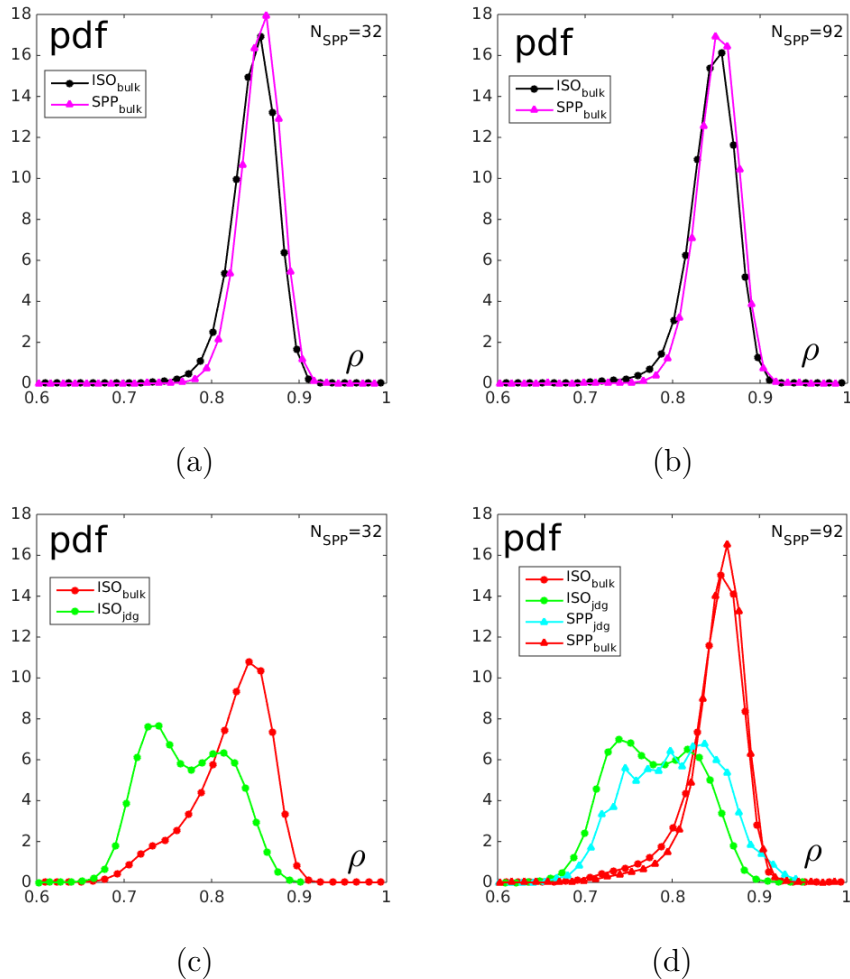


FIGURE 5.10 – **Distributions des densités locales.** (a) : particules ISO (courbe noire) et SPP (courbe rouge) situées dans le *bulk* pour la seconde expérience avec un dopage de 32 SPP. (b) : La courbe noire correspond aux particules ISO et la courbe rouge aux SPP situées dans le *bulk* pour un dopage de 92 SPP. (c) : particules ISO qui ont au moins été une fois détectées dans le joint de grains. Une distribution de densité locale correspondant aux ISO aux instants où ils sont en-dehors du joint de grains (courbe rouge) et aux instants dans le joint de grains (courbe verte) pour un dopage de 32 SPP. (d) : Particules ISO et SPP qui ont au moins été une fois détectées dans le joint de grains pour un dopage de 92 SPP. ISO en-dehors du joint de grains (courbe rouge avec des ronds) et ISO dans le joint de grains (courbe verte), SPP en-dehors du joint de grains (courbe rouge avec des triangles), SPP dans le joint de grains (courbe bleue).

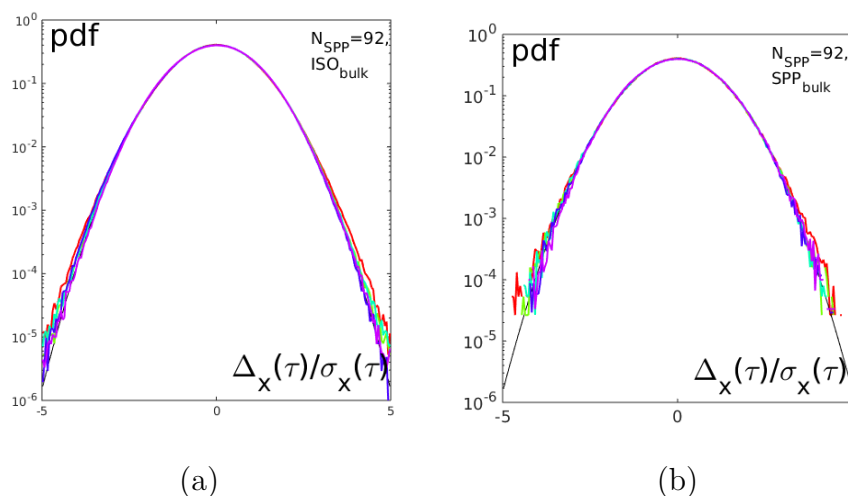


FIGURE 5.11 – **Distributions des déplacements centrés-réduits des particules du *bulk*.** (a) : selon la coordonnée x dans le référentiel du laboratoire, pour les disques ISO situés dans le *bulk* au cours de la quatrième expérience. (b) : idem que la figure (a) mais pour les disques SPP. La courbe en trait plein représente la gaussienne. $N_{SPP} = 92$ $\tau \in [1, 10, 100, 1000, \sim 2000]$ (rouge, vert pomme, bleu ciel, bleu foncé, mauve)

La figure (5.10-c) compare la distribution des densités des disques ISO ayant participé au moins une fois au joint de grains, en distinguant les instants où ils appartiennent au joint de grains (courbe verte) de ceux où ils n'y sont pas (courbe rouge). Cette dernière n'est pas très différente de la distribution des ISO dans le *bulk*, même si elle présente des densités moins élevées. Pour les ISO dans le joint de grains, on distingue bien deux modes, correspondant aux particules entourées de sept voisins (moins dense) et à celles entourées de cinq voisins (plus denses).

Dans la quatrième expérience (figure (5.10-d)), des SPP ont également participé au joint de grains. On peut donc représenter les mêmes distributions de densités pour les SPP. On observe à nouveau qu'en dehors du joint de grains, les SPP ne se distinguent pas énormément des ISO. En revanche, au sein du joint de grains les SPP et les ISO se distinguent, puisqu'on n'identifie pas deux modes dans la distribution de densités. Les SPP s'organisent différemment ; on peut notamment penser qu'elles ont plutôt six voisins que cinq et sept.

Distribution des déplacements. Nous représentons sur les figures (5.11-a) et (5.11-b) la distribution des déplacements centrés-réduits, selon la coordonnée x dans le référentiel du laboratoire et sur différentes échelles de temps (τ), respectivement pour les disques ISO et SPP situés dans le *bulk*. Nous n'avons pas représenté les distributions selon la coordonnée y , mais celles-ci sont similaires.

Tous les disques situés dans le *bulk* forment un cristal. Les particules vibrent dans

leurs cages et elles y restent. Les distributions selon x et y sont Gaussiennes et symétriques à tout τ . Ce qui signifie d'une part que le déplacement est isotrope et d'autre part que les disques SPP ressentent principalement le bruit induit par les collisions.

Pour construire les distributions des déplacements des disques repérés dans le joint de grains, nous avons uniquement considéré les disques y ayant été présents au moins durant 1000 pas de temps, mais pas nécessairement de façon continue. Les particules ayant été par intermittence dans le joint de grains et ne vérifiant pas ce critère ne sont pas du tout prises en compte.

La période prise en compte pour les particules débute lorsque celles-ci sont détectées pour la première fois dans le joint de grains et se finit au dernier instant auquel elles sont détectées. Ce procédé permet à la fois de travailler avec des disques dont la présence dans le joint de grains a été importante, et d'observer principalement des déplacements "réels" à l'intérieur du joint de grains. Enfin, pour la quatrième expérience (figures 5.12-b et 5.12-c) nous nous sommes restreints à la plage temporelle durant laquelle le joint de grains est visible.

Même sans la présence de disques SPP dans le joint de grains pour l'expérience à 32 SPP, on observe qu'à l'intérieur du joint de grains, les distributions des déplace-

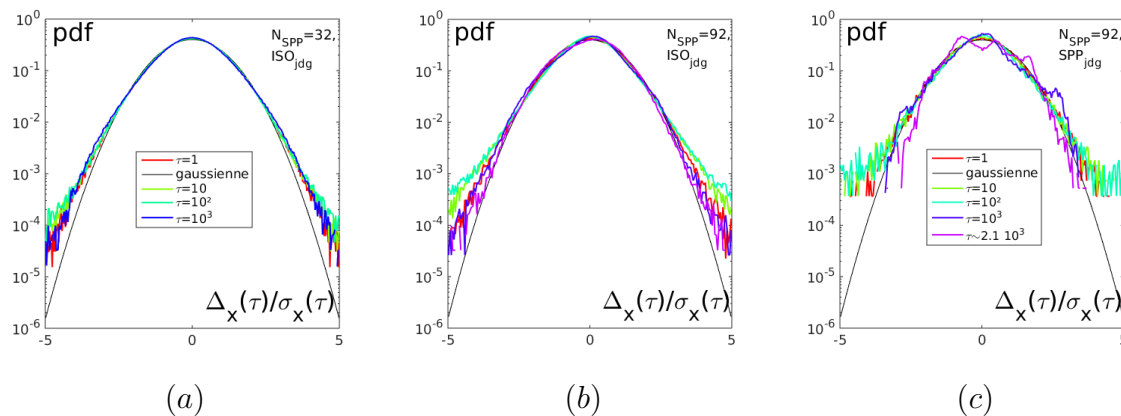


FIGURE 5.12 – **Distributions des déplacements centrés-réduits des particules dans le joint de grains.** (a) : selon la coordonnée x dans le référentiel du laboratoire, pour les disques ISO situés dans le joint de grains au cours de la seconde expérience (dopage à 32 SPP). Les déplacements sont étudiés à des $\tau \in [1, 10, 10^2, 10^3]$ respectivement pour les courbes rouge, verte, bleu clair, bleu foncé. La courbe en trait plein est la gaussienne. (b) : Pour les disques ISO dans l'expérience avec un dopage de 92 SPP. Les déplacements se font sur des temps $\tau \in [1, 10, 10^2, 10^3, 2.1 * 10^3]$ correspondant aux courbes rouge, verte, bleu clair, bleu foncé et mauve. La gaussienne est représentée en trait plein. (c) : De même que pour la figure (b) mais pour les disques SPP.

ments des ISO s'éloignent de la Gaussienne au niveau des queues (voir figure (5.12-a)). Cela indique de la corrélation dans les déplacements des ISO. Un tel comportement non Gaussien est typique de mouvements de particules passives dans un joint de grains, comme l'ont étudié les auteurs des articles [77, 78].

Pour un dopage à 92 SPP, il semble que les déplacements non Gaussiens sont davantage visibles pour les disques ISO sur des τ relativement faibles, de l'ordre de 10 (voir figure (5.12-b)). Cependant, les distributions des déplacements des disques ISO restent piquées en zéro, ce qui signifie que les disques ne se sont quasiment pas déplacés. Pour les disques SPP (voir figure (5.12-c)), on observe que les distributions s'éloignent de la gaussienne dans les mêmes proportions aux faibles τ que pour les disques ISO. Puis pour le temps le plus long, la distribution est clairement non Gaussienne. Les modulations suggèrent que les SPP ont réussi à se déplacer significativement. Ces observations montrent que les ISO ont un déplacements non gaussien dû aux désordres locaux induits par le joint de grains. Par ailleurs, les SPP semblent parvenir à se coupler davantage au désordre local pour se déplacer.

Pour les disques SPP, les déplacements sont visibles sur la figure (5.12-c). Ils sont clairement non Gaussiens à tout temps, et en particulier dès les temps courts (courbe rouge, $\tau = 1$), ce qui constitue à nouveau une différence de comportement avec les disques ISO.

5.2.3 Conclusion

Nous sommes partis d'un cristal d'ISO pur, équilibré pendant presque 20 minutes (10 premières minutes d'équilibration et 10 minutes d'acquisition), dans lequel un joint de grains s'est développé, marquant la frontière entre deux domaines cristallins d'orientations différentes. Quelques études se sont intéressées à décrire et comprendre la physique des joints de grains en deux dimensions. On peut citer en particulier les deux articles [77] des mêmes auteurs. Dans le premier ils s'intéressent aux fluctuations spatiales du joint de grains dues aux fluctuations thermiques, et dans le deuxième ils étudient les déplacements individuels des colloïdes situés dans un joint de grains. Ils reportent un comportement non gaussien de leurs déplacements et observent des similarités avec le mouvement des particules dans un état vitreux.

Orientés par une étude numérique [89] réalisée par l'équipe de M.Dijkstra, nous avons étudié comment des particules actives pouvaient altérer la dynamique d'un joint de grains dans un cristal de particules passives.

Pour ce faire, nous avons dopé le cristal de disques ISO pur à hauteur de quelques pour cents avec des particules actives SPP.

Nous relevons quelques différences notables entre les deux espèces de disques. Le

joint de grains est marqué par des discontinuités spatiales lorsque des disques SPP sont présents en son sein et l'on observe des différences dans la distribution des déplacements et des densités locales. Lorsque nous mettons des disques SPP directement dans le joint de grains, ils semblent favoriser sa rupture, entraînant sa disparition. En ce sens, les disques SPP ont été des éléments déclencheurs dans la chute et dans le retrait lent et progressif du joint de grains. En revanche, ils ne semblent pas avoir été acteurs lors de la disparition finale du joint de grains, celle-ci relevant plutôt d'interactions avec les défauts au bord du système.

Cependant nous ne disposons que d'une seule expérience de ce type ce qui limite la portée de nos conclusions. En particulier, nous ne connaissons ni la statistique de la durée de vie d'un joint de grains, ni la façon dont il se résorbe dans un cristal de disques ISO pur. Il serait intéressant de prolonger ce type d'expériences.

5.3 Comportement de disques SPP isolés ou regroupés dans le cristal d'ISO

Compte tenu de ce qui a été observé, à savoir que des disques SPP isolés ne semblaient pas se comporter de la même façon que lorsqu'ils étaient placés côte-à-côte, il est légitime se demander comment des SPP placés à distance les uns des autres ou bien regroupés ensemble perturbent le cristal de disques ISO en fonction de la densité de dopant.

Nous rappelons qu'une série d'expériences commence par un cristal de disques ISO bien équilibré. Nous en avons réalisé deux. Pour répondre à la question posée nous nous basons sur l'ensemble des expériences réalisées pour la première série (5.2), à laquelle appartiennent les expériences présentées dans la partie du joint de grains précédemment, ainsi que trois autres, réalisées à la suite de l'état cristallin obtenu lors de la quatrième expérience à 92 SPP dans le cristal, une fois le joint de grains totalement disparu. Nous regarderons les résultats d'une deuxième série d'expériences réalisée.

Première série d'expériences. Cette série de trois expériences prend place à la suite de celles décrites précédemment, une fois le joint de grains résorbé. Nous avons remplacé des disques ISO par des disques SPP et laissé un temps d'équilibration d'environ 5 minutes entre chaque expérience avant de lancer des acquisitions de 10 minutes à 30 Hz. Le nombre de SPP parmi les ISO est respectivement de 124, 154, et 175. Soit un dopage de 6%, atteint pour la dernière expérience.

Deuxième série d'expériences. Elle vise à étudier l'impact des disques SPP lorsque ceux-ci se trouvent disposés les uns à côté des autres au sein d'un cristal de disques ISO.

ISO	3033	3001	2970	2941	2909	2879	2858
SPP	0	32	63	92	124	154	175
$100 * \frac{N_{SPP}}{N_{ISO}}$	0%	1%	2%	3%	4%	5%	6%
$\tau_{acquisition}$	10 min.	10 min.	10 min.	10 min.	10 min.	10 min.	10 min.
$\tau_{thermalisation}$	10 min.	5 min.	5 min.	2 min.	5 min.	5 min.	5 min.

TABLE 5.2 – **Configurations des sept expériences de la série 1**, les quatre premières expériences correspondant aux configurations avec joint de grains, les trois dernières au dopage étudié dans cette section.

Nous avons commencé par équilibrer un cristal d'ISO pur à la fraction surfacique de $\Phi \sim 0.80$.

Ensuite nous avons échangé 45 disques ISO par 45 disques SPP en veillant à ce que les particules soient regroupées et disposées au maximum selon une structure hexagonale.

Nous avons procédé par palliers. Au départ, nous avons échangé 7 disques (soit 1 disque entouré de 6 autres) au sein du cristal, puis nous avons élargi ce groupe en ajoutant progressivement des disques à sa périphérie. A chaque fois que nous ajoutons 3 ou 4 disques, nous mettons le système en vibration pour voir si les disques SPP avaient une influence notable sur les disques ISO. Si ce n'était pas le cas, nous continuions à accroître le nombre de disques. Dès lors que les disques SPP ont commencé à manifester un comportement particulier (à 45 SPP), une acquisition de 30 minutes à 30 Hz a été faite (soit 54000 images enregistrées).

Comportement de disques SPP isolés. L'étude de la première série d'expériences ne fait que confirmer que les SPP isolés jusqu'à une fraction de 6% dans le cristal d'ISO ne se déplacent pas, et ne semblent pas altérer la structure cristalline.

Comportement de disques SPP regroupés. Pour étudier le comportement de disques SPP regroupés nous nous intéressons d'abord aux expériences à 154, et 175 SPP dans le cristal d'ISO. Nous rappelons que dans l'expérience à 154 SPP, nous avons disposé 1 SPP entouré de 6 autres, de manière à former un motif hexagonal. Durant les 10 minutes de l'expérience à 154 SPP, le groupe de 7 initialement formé est resté en place.

Nous avons alors augmenté la taille du groupe de 7 à 28 SPP, toujours dans un souci de conserver un groupe compact. Le nombre de 28 a été choisi de façon à accroître la fraction de SPP de 1%.

Nous montrons sur la figure 5.13 de gauche une carte des positions de tous les disques à l'instant initial et à droite nous représentons les déplacements quadratiques moyens de tous les SPP présents dans le cristal.

On a classé les SPP en deux catégories selon la forme de leur déplacement quadratique moyen : en bleu, les SPP dont le déplacement quadratique moyen fait un plateau, en rouge ceux qui ne restent pas piégés.

On observe que la plupart des disques isolés sont en bleu. Par contre, on observe que les 28 disques initialement regroupés ainsi que des disques situés en-dehors à quelques diamètres du groupe des 28 sont en rouge.

Ceci indique que des disques regroupés en nombre suffisant ont permis de déstabiliser leur environnement dans le cristal. Comment cela s'est-il produit ?

On observe trois phases :

- La première dure quelques minutes après la mise en marche de la vibration. Les disques SPP appartenant au groupe restent à leur position, ils vibrent, leurs orientations fluctuent et ne montrent pas d'alignement particulier.
- La seconde phase débute lorsque les SPP du groupe se distendent de l'intérieur sous l'effet de cisaillements. Cela provoque du désordre dans la structure, qui s'étend jusqu'à l'extérieur du groupe de disques SPP. La zone désordonnée est soumise à une forte activité d'apparitions de défauts, qui bougent et se propagent dans le cristal. Au cours de cette phase, du mélange s'opère entre des disques ISO et des disques SPP appartenant au groupe. Les disques SPP peuvent alors diffuser. Le cristal tente de se restructurer et finalement il y parvient ! A la fin on observe que le groupe de SPP s'est réduit et semble plus compact que dans l'état initial. En conséquence, une "goutte" (5.14-b) de volume disponible est nucléée dans la structure. Par volume disponible,

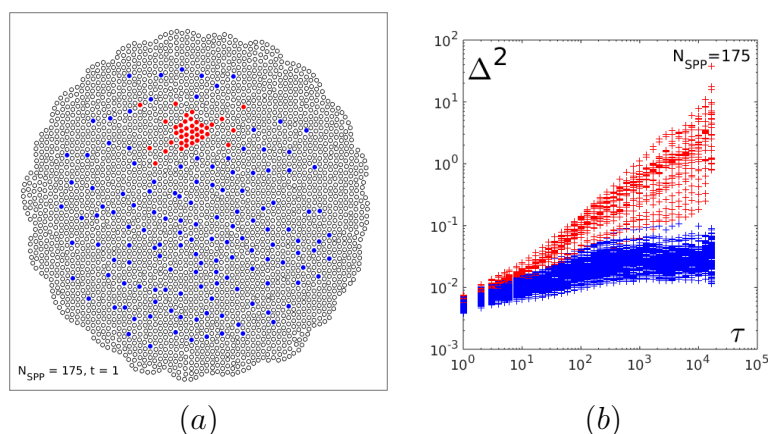


FIGURE 5.13 – **Dopage de disques SPP isolés et regroupés.** (a) : positions des disques à l'instant initial. Les ISO sont en blanc et les SPP sont en couleur rouge ou bleu selon qu'ils se sont déplacés comme le montrent les déplacements quadratiques moyens sur la figure (b).

j’entends le fait que de l’espace inter-disques a été libéré tel que sur certains instantanés il serait possible d’y insérer un disque supplémentaire sans déplacer les autres disques avoisinant.

- Enfin la troisième phase débute après la nucléation de la “goutte”. Cette dernière est très mobile et explore facilement l’espace. Par intermittence, elle reste soit localisée au niveau du groupe de SPP, soit elle s’en éloigne et diffuse dans l’ensemble du cristal. Là où se situe la “goutte”, le réseau hexagonal régulier que forment les disques se dilate. Par conséquence les disques dans le voisinage de la “goutte” peuvent s’extraire de leur cage et diffuser. Néanmoins, dès lors que la “goutte” s’en va, les disques se replacent dans un réseau hexagonal. Une des conséquences directe du passage de la goutte est la réorganisation du réseau de voisinage.

Il est très difficile d’être davantage quantitatif à ce stade sur la dynamique de la “goutte” de volume disponible. On peut observer au cours du temps une succession de périodes durant lesquelles la “goutte” se scinde en lacunes, qui diffusent dans le cristal avant que celles-ci fusionnent pour former de nouveau la “goutte” et ainsi de suite.

Pour aller plus loin dans la description et dans la compréhension de ce mécanisme, nous exploitons la deuxième série d’expériences.

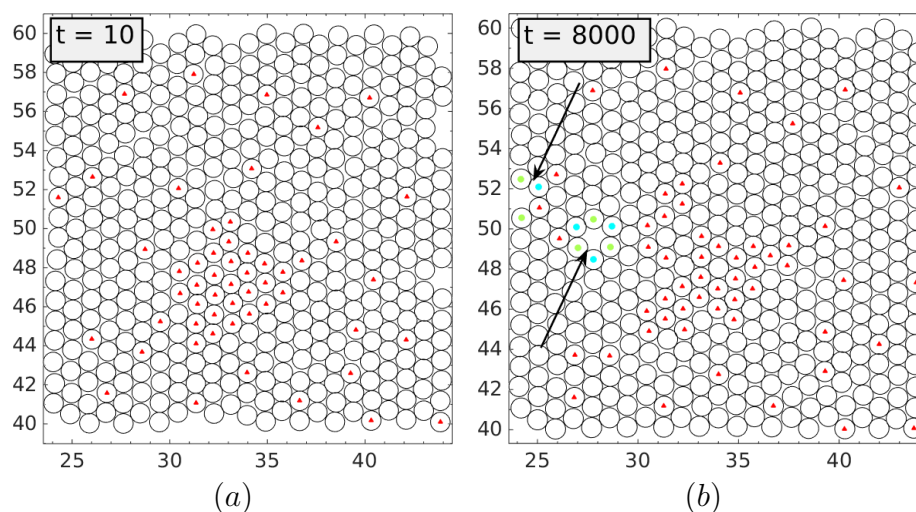


FIGURE 5.14 – **Libération de volume “disponible”**. (a) : Groupe de SPP au début de l’expérience au temps $t = 10$. Au centre de l’image, on aperçoit le groupe de SPP, représentés par des triangles rouge. (b) : au temps $t = 8000$, on observe deux lacunes sur la gauche indiquées par les flèches. Ces défauts observés font partie de la “goutte” qui a cet instant s’est divisée en lacunes. Le groupe de SPP s’est éclaté et des disques ISO se sont incorporés au milieu des disques SPP.

5.3.1 Détente et stagnation de l'enveloppe externe du groupe de SPP

Pour mémoire, après avoir équilibré un cristal d'ISO pendant 30 minutes, nous avons échangé 45 disques ISO par 45 disques SPP groupés à l'instant initial.

Observations visuelles.

Le transitoire ressemble fortement à celui observé dans l'expérience précédente. Le groupe se distend de l'intérieur, ce qui a pour conséquence de désorienter le cristal via l'émission de lignes de dislocations. Le cristal parvient néanmoins à se stabiliser en un cristal avec une seule orientation. Les SPP sont plus compactes qu'au départ, et laissent alors de la place pour nucléer une "goutte".

On propose de regarder l'évolution temporelle de l'enveloppe convexe du groupe de SPP. A chaque instant, nous construisons le `convexHull` de l'ensemble des SPP. Ceci nous permet d'obtenir facilement l'aire à l'intérieur de l'enveloppe externe du groupe SPP en fonction du temps et de compter le nombre d'ISO intégrant l'enveloppe.

On représente sur la figure (5.15) le volume du groupe de SPP en fonction du temps et le nombre d'ISO intégrant le groupe de SPP. On observe que le nombre d'ISO croît de la même manière que le volume : par intermittence au cours du temps. La

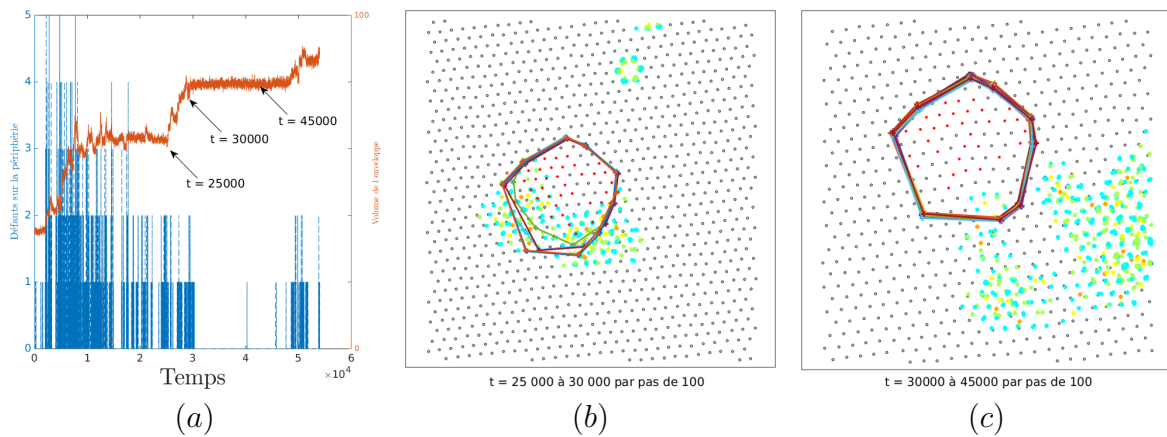


FIGURE 5.15 – **Dopage de disques SPP regroupés.** (a) : Evolution de la taille de l'enveloppe externe du groupe de disques SPP en fonction du temps (tracée en rouge). Nombre de défauts à l'intérieur de l'enveloppe en fonction du temps. Les flèches noires indiquent les moments entre lesquelles les illustrations des figures (b) et (c) ont été faites. (b) et (c), cartes du système, agrandies au niveau du groupe des disques SPP aux instants $t = 25000$ et $t = 30000$. Les SPP sont en rouge, les disques ISO sont en noir. Les défauts sont représentés par des couleurs en fonction de leur nature. Sur ces cartes on accumule la position des défauts et de l'enveloppe externe sur 100 pas de temps, entre les instants $t = 25000$ et $t = 30000$ pour la figure (b) et $t = 30000$ et $t = 45000$ pour la figure (c).

première expansion observable est la conséquence de la distorsion interne du groupe. L'apparition du premier plateau signe le début de la troisième phase, où la goutte apparaît et commence à se déplacer.

Dans la suite nous nous concentrons sur ce qui se passe à partir de l'apparition de la "goutte". Au vu de l'évolution temporelle du volume, dès lors que le régime de la goutte a débuté, on peut se demander quelle est la cause des phases intermittentes.

Nous représentons sur les figures (5.15-b) et (5.15-c) les positions cumulées de la goutte, que nous associons à l'excitation des défauts dans la structure, et la position de l'enveloppe externe au groupe de SPP sur 100 pas de temps, entre les instants $t \in [25000...30000]$ et $t \in [30000...45000]$, qui correspondent respectivement d'après la figure (5.15-a) à une phase de croissance et de stagnation. Sur la figure (5.15-b), les quelques défauts identifiés en dehors du groupe de SPP concernent des défauts intrinsèques au cristal de disques durs d'ISO. En particulier, les disques légèrement excentrés dans la partie haute de la figure correspondent à deux lacunes apparues lors de la thermalisation du cristal.

Comme mesuré sur la figure (5.15-a), on observe sur la figure (5.15-b) que l'enveloppe accroît son volume, et que des défauts se localisent à l'interface entre les SPP et les ISO. Au contraire, sur la figure (5.15-c), l'enveloppe se superpose au même endroit, et les défauts sont pour la plupart concentrés à l'extérieur de celle-ci.

Lorsque la goutte de volume disponible (représentée par les défauts) se trouve à l'interface disques SPP/ISO, le groupe de SPP s'étend. Par contre, lorsqu'elle ne s'y localise pas, la taille de l'enveloppe stagne. La durée des périodes de croissance et de stagnation de l'enveloppe du groupe de SPP est liée à la mobilité de la goutte et à la fréquence à laquelle la goutte visite le groupe. La goutte dilate le réseau lors de son passage. Lorsque celle-ci se situe à l'interface du groupe SPP et du cristal d'ISO, sous réserve que l'orientation le leur permette, des SPP profitent de l'espace créé pour détendre l'enveloppe du groupe. Des échanges de positions entre particules se font, et des disques ISO pénètrent à l'intérieur de l'enveloppe. Ceci indique que les SPP de la périphérie se couplent fortement aux défauts présents lors du passage de la goutte, mais n'induisent pas de nouveaux défauts.

Enfin, précisons que la dernière phase de croissance observable sur la figure (5.15-a), est de même nature et liée à la même cause que la phase de croissance entre les instants $t \in [25000...30000]$.

Mobilité de la goutte versus mobilité d'une lacune.

Au vu de ces deux cartes, il est intéressant de souligner la forte mobilité de la goutte, comparée à celle d'une simple lacune d'ISO. En effet, nous pouvons voir que les lacunes initialement formées dans le cristal d'ISO (centre-haut-droit de la figure) ne se sont quasiment pas déplacées.

5.3.2 Orientations, des SPP qu'ils soient isolés ou groupés

Sur les films (mis à disposition en annexe) nous pouvons voir que les SPP ne parviennent pas à tenir une direction fixe. La direction de leur polarité fluctue sans cesse.

Nous pouvons interpréter cette observation en nous basant sur le modèle décrivant la dynamique des SPP (voir chapitre 1). En effet, nous savons que la dynamique d'une SPP individuelle tend vers un point fixe vers lequel la vitesse atteint sa vitesse nominale et s'aligne en direction selon sa polarité. Pour qu'une particule puisse converger vers son point fixe, celle-ci doit avancer. Or les disques ne se déplacent pas, ou très peu. Dans ces expériences les seules causes de déplacements sont dues aux désordres (locaux) induits par le joint de grains ou au passage de la "goutte". Les disques SPP sont totalement freinés par les disques ISO. Ceci a pour conséquence de contraindre les disques SPP à rester dans leur cage sous l'effet des chocs. Vues les densités auxquelles on travaille, les SPP n'ont pas suffisamment d'espace pour se déplacer, leur vitesse ne converge pas vers leur vitesse nominale, et donc l'orientation ne parvient pas à se maintenir dans une direction et fluctue.

Par ailleurs, ces observations sont à mettre en opposition avec ce que l'on a reporté dans le cas des expériences à très haute densité $\Phi \sim 0.89$ des disques polaires, réalisées dans l'enceinte hexagonale. En effet, pour ces dernières expériences, les disques SPP ont moins de place et pourtant elles se déplacent et arrivent à s'aligner. Ensemble ces deux observations signifient que plus le bruit extérieur est important et moins les disques polaires se déplacent, faisant alors chuter leur activité.

5.4 Conclusion

Nous avons effectué deux séries d'expériences en phase dense, pour tenter de voir comment un cristal d'ISO préalablement équilibré réagissait lorsqu'on échangeait quelques disques ISO par quelques disques SPP.

Lors de la première série d'expériences, nous avons tiré profit de la formation d'une ligne de défauts pour étudier le couplage entre les SPP et cette ligne. Le résultat montre que quelques disques polaires SPP dans l'environnement de la ligne n'ont eu pratiquement aucune influence sur celle-ci. En revanche, lorsque des SPP ont été déposés directement, même en quantité très faible, dans le joint de grains, ce dernier s'est résorbé laissant supposer un comportement singulier des disques SPP dans le déclenchement du retrait du joint de grains.

La deuxième observation est que dans un cristal d'ISO, des SPP isolés, c'est-à-dire éloignés les uns des autres, ne permettent pas de faire fondre le cristal. Cependant, un nombre suffisant de SPP regroupés ensemble libère de façon spectaculaire une

“goutte” de volume disponible qui se déplace assez rapidement et explore la structure cristalline, accélérant certainement la dynamique.

A l’issue de ces expériences, plusieurs questions restent en suspens et la conduite de simulations numériques serait la bienvenue :

- Les disques SPP ne semblent pas altérer la structure cristalline lorsqu’ils sont isolés. En revanche, à quel point leur présence pourrait-elle modifier le spectre de vibration du cristal comparé au cas où seuls des disques ISO sont présents ?
- La goutte est-elle immuable ? En effet, lors de son passage, des SPP échangent leurs positions avec des ISO. Du mélange se fait et les SPP se retrouvent à nouveau isolés.

Chapitre 6

Mesure de la pression pour des disques durs actifs

6.1 Introduction

De nombreux travaux, en particulier théoriques, ont cherché à savoir si l'on peut étendre des notions de thermodynamique d'équilibre, telle que la pression (Réf. [81, 80, 86, 97, 82, 43, 31]) ou la température (Réf. [53, 65, 52, 85, 79]), à des systèmes actifs, et en particulier savoir si ces concepts peuvent définir des variables d'état.

6.1.1 Définitions de la pression à l'équilibre thermodynamique

A l'équilibre thermodynamique, trois voies sont possibles pour mesurer une pression : celle donnée par la mécanique F/S , c'est-à-dire la force exercée par le liquide sur la surface S de la paroi du contenant ; celle donnée par la thermodynamique correspondant à $P = -\partial\mathcal{F}/\partial V|_{S,\mathcal{N}}$, où \mathcal{F} est l'énergie libre du système ; et celle donnée par la pression hydrostatique $P = -\frac{1}{d}\text{Tr}(\sigma)$, avec σ le tenseur des contraintes à l'intérieur du système. A l'équilibre, toutes ces définitions convergent vers un même résultat. Ceci signifie qu'un fluide peut être divisé en différentes partitions : chacune de ses partitions sont en équilibre mécanique les unes par rapport aux autres et en équilibre mécanique avec les bords. Par ailleurs, la pression pour un liquide est reliée par une équation d'état du type $f(\rho, P, T) = 0$, qui ne fait intervenir que des quantités du *bulk* du système. En d'autres termes, la pression mécanique, c'est-à-dire la force exercée par les particules sur une paroi qui les confine, a la particularité d'être indépendante de la nature de la paroi. Ceci en fait une bonne variable d'état thermodynamique. (Réf. [34, 36])

6.1.2 Pression mécanique en matière active : théorie et numérique

Dans l'article [80], les auteurs s'intéressent à la pression mécanique exercée par des particules actives Browniennes (ABP) sur-amorties et plongées dans un solvant. Les particules évoluent en deux dimensions. Elles sont confinées selon la direction x et sont libres de se déplacer dans la direction y .

Dans un premier cas, les particules n'interagissent pas ensemble, mais s'alignent le long des bords du fait d'un couple exercé par le bord sur les particules. Dans un deuxième cas, les particules interagissent ensemble pour s'aligner les unes par rapport aux autres, mais le mur n'exerce cette fois plus de couple. En appelant \mathcal{U} le potentiel qui confine les particules, les auteurs mesurent la pression mécanique comme l'intégrale $P = \int \rho(x) \partial_x \mathcal{U}(x) dx$.

Dans le premier cas, ils obtiennent une expression de la pression mécanique qui dépend explicitement du terme de couple entre le mur et les particules, et de la probabilité de trouver une particule à la position \vec{r} orientée dans la direction θ ($\text{Prob}(\vec{r}, \theta)$). Or, cette distribution est directement reliée aux termes de bord *via* une équation de Fokker-Planck, dérivée à partir des équations du mouvement. Dans le second cas, ils obtiennent à nouveau une dépendance explicite du terme de surface à travers la probabilité $\text{Prob}(\vec{r}, \theta)$. Leur conclusion est que la pression mécanique n'est pas une bonne variable d'état pour des particules actives ABP, qui ont tendance à s'aligner soit le long des bords, soit mutuellement les unes par rapport aux autres.

Par ailleurs, pour tester dans quelle mesure les bords influent sur la pression exercée par les particules, les auteurs simulent quelques cas particuliers de particules ABP. Leur contenant est composé de deux espaces séparés par une paroi rigide. La paroi est libre de se translater dans la direction x . Un même nombre de particules est placé à gauche et à droite de la paroi. Les particules interagissent avec la paroi *via* des potentiels harmoniques d'intensités différentes, selon la chambre dans laquelle elles se situent. L'expérience consiste alors à regarder l'évolution de la paroi. Si cette dernière bouge, ceci prouve que la pression mécanique dépend explicitement des bords.

Ils observent que dans les cas de particules ABP sphériques attractives ou répulsives qui n'ont pas la capacité de s'aligner ni avec les bords, ni entre elles, la paroi reste à la position centrale du contenant. Par contre, la paroi se décale nettement pour des particules sans interaction qui s'alignent le long du bord.

D'après ces calculs et cette simulation numérique, on en conclut que la pression mécanique n'est pas toujours une bonne variable d'état pour des particules actives de type ABP. Un seul type de particules permet de définir la pression mécanique comme une bonne variable d'état : celles qui sont sur-amorties, sphériques, interagissant par répulsion ou non, pour lesquelles ni le substrat, ni les interactions,

ni la paroi n'exercent aucun couple (Réf. [81]). Par ailleurs, pour ces particules, les auteurs ont dérivé une équation d'état pour la pression faisant intervenir trois termes : un terme de pression idéale, similaire à celui que l'on observerait pour un gaz parfait d'équilibre, un terme de pression directe, qui dépend des échanges de moments entre les particules et que l'on obtiendrait pour des particules d'équilibre, un terme de pression indirecte, propre à la nature active des particules, résultant d'un couplage entre les forces d'auto-propulsion et d'interaction entre les particules. Selon les auteurs, ce terme correspondrait au ralentissement de particules actives ABP regroupées dans une même région et serait responsable de la séparation de phases dites MIPS. Ces résultats ont été corroborés par des approches complémentaires [86, 97]. Pour un système expérimental donné, pour lequel on ne connaît pas le détail des interactions, il n'est donc pas évident de savoir si la pression mécanique peut ou non jouer le rôle de variable d'état.

6.1.3 Pression hydrostatique mesurée expérimentalement

Avant que nous n'entamions une mesure de la pression mécanique dans le cas de notre système expérimental, une expérience [31] réalisée par l'équipe de Cécile Cottin-Bizonne a permis de mesurer une pression hydrostatique dans un système de colloïdes janus actifs. Il s'agit d'un colloïde sphérique en or d'environ $1\mu\text{m}$ de rayon, dont un des hémisphères est recouvert de platine, lui conférant une polarité. Lorsque le colloïde est plongé dans de l'eau pure, sa dynamique est purement passive. Par contre, si l'on ajoute du peroxyde d'hydrogène, une réaction chimique se produit à la surface du colloïde. Ceci a pour effet de générer un gradient de concentration au bord du colloïde qui le propulse dans la direction de sa polarité par diffusio-phorèse. Dans cette expérience, la concentration de peroxyde d'hydrogène contrôle l'activité des particules.

Par ailleurs, le modèle numérique étudié et développé par Ludovic Berthier [51] a été appliqué à l'étude de la sédimentation de ces particules janus. L'hypothèse qui est faite ici, est que les particules janus sont des sphères dures sans attraction. Il s'agit d'un modèle minimal pour décrire la persistance des disques durs, décrit par les équations suivantes :

$$\vec{\delta}_i(t) = \vec{\delta}_i(t-1) + \delta_1 \vec{\xi}_i, \quad (6.1)$$

$$\vec{r}_i(t+1) = \vec{r}_i(t) + \vec{\delta}_i(t) \times p_{acc}. \quad (6.2)$$

Avec, \vec{r}_i , le vecteur position d'un disque i . $\vec{\delta}_i(t)$ est le vecteur d'orientation par rapport auquel la particule se déplace. p_{acc} vaut 1 si le déplacement est autorisé, 0 sinon. $\vec{\xi}$ est un bruit blanc gaussien. Pour une dynamique purement d'équilibre, l'orientation de la particule évoluerait comme $\vec{\delta}_i(t) = \delta_0 \vec{\xi}_i$. Le modèle contraint l'amplitude du déplacement des particules δ_1 à être comprise dans l'intervalle $[-\delta_0; \delta_0]$.

L'équation sur $\vec{\delta}_i$ exprime que l'orientation de la particule garde une mémoire par rapport à son état précédent. Ce modèle décrit donc la persistance du mouvement des disques durs qui ne s'alignent pas. L'équation sur la position brise l'invariance par retournement temporel, et donc le bilan détaillé. En ce sens, la dynamique est hors d'équilibre et active. Enfin, il est possible de construire un temps τ qui correspond au temps au bout duquel l'orientation a perdu sa mémoire $\left(\tau = \left(\frac{\delta_0}{\delta_1}\right)^2\right)$. C'est le paramètre de contrôle qui a été utilisé pour faire varier la persistance des disques qui sédimentent.

Des instantanés de l'expérience et du modèle numérique montrent le même type de profil en fonction de l'activité des particules, comme illustré sur la figure (6.1-i).

La mesure la plus directe qu'il est possible de faire est celle de la densité de particules en fonction de l'altitude. Les auteurs observent une densité qui varie de manière monotone avec l'altitude : un profil dilué s'étend vers les hautes altitudes à mesure que l'activité croît. Plus on descend en altitude, plus les particules sédimentent et s'agrègent dans un régime dense amorphe.

L'objectif de l'équipe de C. Cottin-Bizonne est d'extraire la pression à partir de la mesure de la concentration qu'ils font à chaque tranche d'altitude $\phi(z)$. Pour cela ils introduisent

$$P(z) = \Pi(z) - \Pi_0 = (mg \sin \theta / \pi R^2) \int_z^L dz' \phi(z') \quad (6.3)$$

avec $\Pi(z)$ la pression osmotique en fonction de l'altitude des particules dans la cellule, $g \sin \theta$ la gravité effective sentie par les particules, et R le rayon des colloïdes. Puis, ils tracent le facteur de compressibilité $Z = P / \rho k_B T_0$ en fonction de ϕ , avec T_0 la température du bain dans lequel sont plongés les colloïdes.

Les résultats issus des expériences et des simulations coïncident. Ils observent que sans activité, Z suit l'équation de Percus Yevick des sphères dures à trois dimensions. A activité non nulle les courbes $Z(\phi)$ changent drastiquement. Pour des activités modérées, Z croît moins vite que dans le cas des particules passives. A bas ϕ , plus l'activité augmente et plus Z croît spectaculairement, avant de diminuer pour des ϕ plus élevées. Dans la limite $\phi \rightarrow 0$ à activité non nulle, ils trouvent que la pression vérifie l'équation d'état du gaz parfait $P = \rho k_B T_{\text{eff}}$ à une température effective T_{eff} . Cette température se déduit de la distribution de densité en fonction de l'altitude, qui vérifie la distribution de Boltzmann. Enfin, pour des fractions surfaciques plus élevées, ils ajustent leur mesure au développement du viriel, obtenu dans le cas du modèle de Baxter (Réf. [3]). Ce modèle décrit des particules de sphères dures d'équilibre qui s'attirent fortement à très courte distance à deux dimensions. Le potentiel s'écrit

$$V(\sigma < r < \sigma + \delta) = -k_B T \log \left(\frac{\sigma + \delta}{4\delta} A \right) \quad (6.4)$$

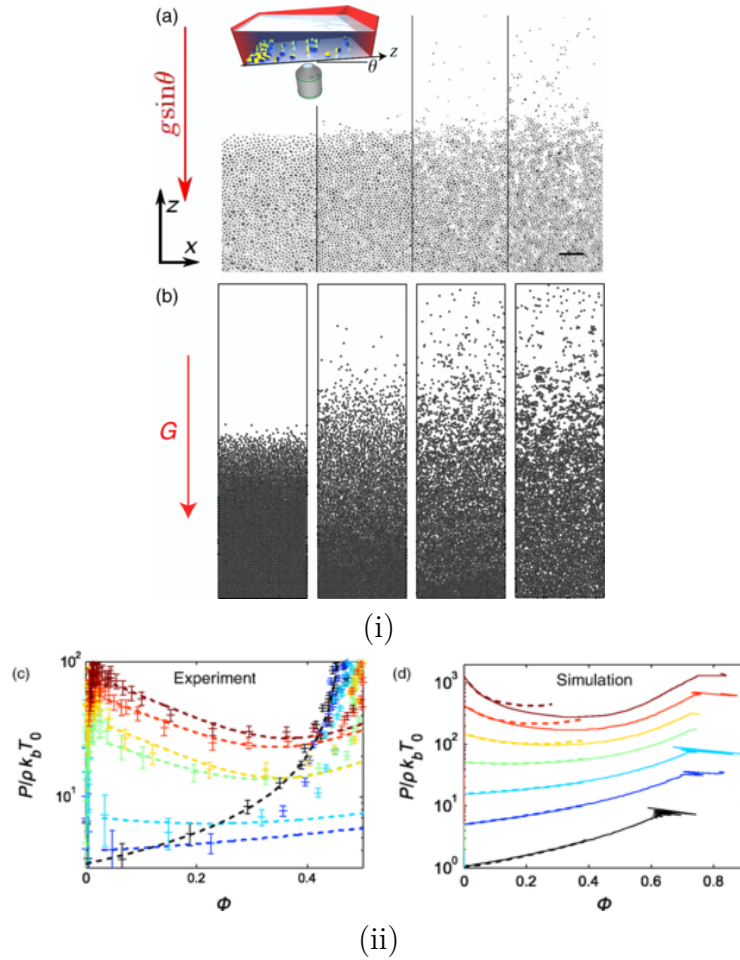


FIGURE 6.1 – **Pression mesurée dans des colloïdes janus actifs.** Figures extraites de la réf. [31]. (i)-(a) : Tout en haut de la figure a été représenté le schéma du montage expérimental. (i)-a et b : Profil de sédimentation pour différentes activités croissantes de la gauche vers la droite en haut pour les expériences et en bas pour les simulations numériques. (ii) : Mesure du facteur de compressibilité en fonction de la densité ϕ , dans le cas de l'expérience à gauche et dans le cas de la simulation numérique à droite. La courbe noire représente le cas de colloïdes passifs. Les lignes en pointillés sont obtenues par l'ajustement du développement du viriel du modèle de Baxter. Pour la figure de gauche, du bas vers le haut, les courbes correspondent à des températures effectives croissantes $T_{\text{eff}} \in [1, 5, 15, 34, 47, 62, 87]$. Pour la figure de droite, les courbes vont du bas vers le haut pour un τ croissant, $\tau \in [0, 1, 3, 10, 30, 100, 300, 1000]$.

avec A un paramètre sans dimension qui représente l'intensité de l'adhésion entre les particules. Ils ajustent correctement les courbes expérimentales avec le développement du viriel tronqué à l'ordre deux, tel que $Z = \frac{P}{\rho k_B T} = \alpha(1 + b_1\phi + b_2\phi^2 + O(\phi^3))$, avec notamment $\alpha = T_{\text{eff}}/T_0$ et $b_1 = 2 - A$ et b_2 un développement en puissance

de A , le paramètre d'adhésion des particules. Ils notent que $A > 2$ et donc $b_1 < 0$ pour toutes les courbes Z où l'activité des particules est non nulle. Ceci reflète une certaine attraction effective entre les particules janus (voir figure (6.1-ii)). En outre, ils obtiennent une relation en loi de puissance $A \sim \sqrt{T_{\text{eff}}/T_0}$, qu'ils vérifient aussi numériquement. Cette forme de développement du viriel, identique à toute activité, leur permet de conclure que les particules janus semblent obéir à une équation d'état au moins à relativement basse densité. Les particules seraient dans un équilibre effectif à la température T_{eff} , adhérant plus ou moins fortement en fonction de leur activité.

Cette expérience semble indiquer qu'une équation d'état pourrait s'appliquer aux particules janus considérées. Cependant, nous pouvons nous demander si l'équation d'état est bien indépendante de paramètres externes tels que la gravité, que les auteurs n'ont pas fait varier.

6.1.4 Plan du chapitre

En ce qui nous concerne, nous savons que le modèle des ABP ne s'applique pas aux disques durs polaires vibrés de notre expérience (Réf. [47, 94]). En effet, les disques SPP s'alignent naturellement le long d'une paroi puisqu'ils perçoivent un couple exercé par le substrat dès que leur vitesse n'est pas alignée avec leur polarité.

Du fait de leur dynamique interne particulière, les disques durs polaires se couplent-ils de manières différentes à deux parois quasi-similaires ? Par ailleurs, comment les disques ISO se couplent-ils à ces différentes surfaces ? S'ils peuvent montrer des comportements proches des disques durs d'équilibre, comme en atteste leur déplacement, à quel point vérifient-ils l'équation d'état des disques durs d'équilibre ?

L'idéal, pour répondre à ces questions, serait de concevoir un capteur de pression. Un tel capteur intègre dans le temps les chocs des particules sur sa paroi pour obtenir une mesure de la pression. Le plus naturel des capteurs de pression est le piston, sans friction. Mais notre système expérimental est très contraints en terme de hauteur (voir chapitre 1) et il est quasiment impossible d'y incorporer un tel capteur qui ne soit pas dominé par la friction.

Nous nous sommes alors construits un moyen de mesurer la pression mécanique qu'exercent les disques sur une membrane élastique constituée d'une chaîne (figure 6.2). Puis grâce au modèle que nous avons développé, nous avons été capables d'inférer la pression mécanique qu'exercent les disques sur la membrane *via* la courbure que prend la chaîne au cours du temps.

Tout au long de ce chapitre nous essayerons de savoir si les disques durs SPP ou ISO obéissent à une équation d'état. Pour le savoir, nous avons réalisé deux ensembles d'expériences avec deux chaînes différentes : si les pressions mécaniques mesurées

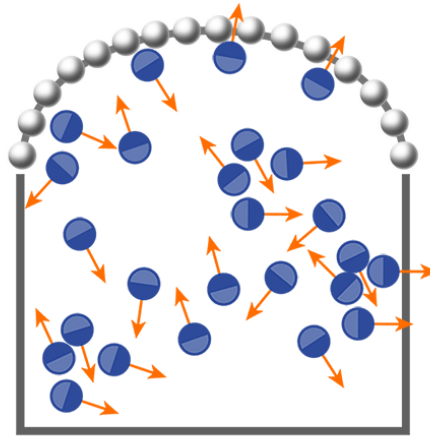


FIGURE 6.2 – **Pression mécanique exercée par des particules actives sur une membrane flexible.** Vue d'artiste de l'expérience. Les disques polaires actifs sont confinés dans un contenant dont l'une des parois est une membrane élastique. Nous mesurons la pression qu'exercent les disques sur la membrane élastique. Extrait de la réf. [2].

pour les ISO ou les SPP dépendent explicitement de la nature de la chaîne, alors nous pourrions en conclure que des effets de surface interviennent dans la pression mécanique qu'exercent les disques sur la chaîne et donc que la pression mécanique n'est pas une bonne variable d'état.

Nous commencerons par expliquer les principes des différentes expériences réalisées, puis nous détaillerons l'analyse d'images propres à ces expériences. Nous présenterons ensuite le modèle pour inférer la pression, enfin nous passerons à l'étude de nos résultats.

6.2 Méthode expérimentale

Nous avons travaillé avec la couronne en forme de fleur. Nous l'avons découpée en deux hémisphères égaux, avant de placer une chaîne entre ces deux hémisphères, pour les séparer en deux volumes égaux. Deux chaînes différentes par leur forme géométrique (même longueur, mais nombre de billes différent) ont été utilisées. Nous avons répété avec chacune les mêmes types d'expériences. Par ailleurs, pour l'ensemble des expériences, le système expérimental a été calibré en deux temps : d'abord en s'assurant de la répartition homogène des disques dans l'arène, puis en retirant les disques et en y faisant vibrer uniquement l'une ou l'autre chaîne en s'assurant qu'elles fluctuent autour du diamètre de l'arène.

Les expériences ont été faites pour une vibration sinusoïdale à une accélération

$\Gamma = 2.4$ et à une fréquence de 95 Hz. Le temps de l'expérience a été choisi de façon à concilier un temps qui évite au vibreur de chauffer excessivement tout en nous permettant d'enregistrer suffisamment de configurations indépendantes pour échantillonner le plus largement possible l'espace des configurations de la chaîne. Concernant le vibreur, nous nous étions rendus compte qu'il avait pu atteindre des températures de l'ordre de 70 degrés Celcius avant d'entamer ces expériences. Une climatisation avait donc été positionnée à son niveau pour le maintenir à des températures raisonnables. La durée de l'expérience a été fixée à 1h30, soit 30 minutes d'équilibrage suivie d'une heure d'enregistrement au rythme d'une image par seconde. Nous disposons donc d'un ensemble de 3 600 images pour chaque expérience. Bien entendu, à cette fréquence d'acquisition, il n'est évidemment pas possible de suivre les particules.

6.2.1 Paramètres des expériences

Nous avons réalisé deux types d'expériences :

1. Le premier type d'expériences consiste à établir la courbe de la pression pour une chaîne donnée en fonction de la fraction surfacique Φ pour chacune des deux espèces de disques. Pour cela nous mettons un nombre fini de disques (N_1 , soit des ISO ou des SPP) dans le compartiment gauche tout en maintenant vide le compartiment de droite ($N_2 = 0$). Les nombres d'ISO et de SPP que nous avons pris pour établir ces courbes de pression pour chacune des deux chaînes sont résumés dans le tableau (6.1).
2. A partir des courbes de pression obtenues à l'issue des expériences précédentes, le deuxième type d'expériences consiste à vérifier, si dans le cas où nous mesurons la même valeur de pression pour chacun des deux types de disques ($P(N_{ISO}) = P(N_{SPP})$, avec *a priori* $N_{ISO} \neq N_{SPP}$) nous avons une chaîne qui fluctue peu autour du diamètre lorsque nous mettons un nombre N_{ISO} à gauche et N_{SPP} à droite. Autrement dit, la pression est-elle identique entre les deux compartiments ?

$N_{1,ISO}$	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900
N_2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
$N_{1,SPP}$	0	10	25	50	75	100	150	200	300	400
N_2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

TABLE 6.1 – **Expériences de mesure de la pression mécanique.** Haut : Nombre de disques ISO mis dans le compartiment de gauche. Bas : Nombre de disques SPP mis dans le compartiment de gauche.

6.2.2 Mécanique des chaînes utilisées

Les deux chaînes sont de même nature mécanique, et de manière triviale nous dirions qu'elles sont semblables à celles que l'on utilise pour accrocher les bouchons pour fermer des éviers (voir figure (6.3)). Les chaînes sont constituées d'une succession de billes et de tiges métalliques. La liaison entre une tige et une bille est une rotule que nous considérons parfaite. Elle ne transmet pas de moment et seule une tension se propage le long des tiges. Autrement dit, les chaînes peuvent uniquement s'étirer et ne peuvent pas se vriller. L'angle entre deux maillons successifs est limité, ce qui donne à la chaîne une limite de courbure maximale. Enfin, la distance entre deux billes n'est pas tout à fait constante. En effet, tout le monde peut en faire l'expérience, il est possible de rapprocher deux billes successives. Cependant, dans le cadre de notre étude, la chaîne étant presque toujours en tension, la distance entre les maillons est proche de la distance maximale dans toutes les configurations explorées et nous l'avons donc considérée constante.

Les caractéristiques géométriques des deux chaînes utilisées sont présentées dans le tableau (6.2).



FIGURE 6.3 – **Photo des deux chaînes utilisées.** A gauche : chaîne utilisée lors des premières expériences. A droite : lors de la seconde expérience.

	J	σ (mm)	l (mm)	η_{max}	L_0 (mm)
chaîne 1	91	2.33	3.10	$\pi/8$	282.10
chaîne 2	147	1.44	1.92	$\pi/8$	282.24

TABLE 6.2 – **Caractéristiques des deux chaînes utilisées.** J le nombre de maillons. l la longueur d'un maillon (distance centre à centre de deux billes consécutives). σ le diamètre des billes. $L_0 = Jl$ la longueur totale ($L_0 \neq D$, avec D le diamètre de l'arène). η_{max} l'angle maximal en valeur absolue que font deux maillons successifs.

6.2.3 Analyses des images

Le but est de détecter la position des billes qui composent la chaîne dans l'image.

La détection se fait en deux étapes :

1. La première étape consiste à détecter la position des billes. On distingue les deux billes positionnées aux deux extrémités par lesquelles la chaîne est attachée à la couronne, et les autres. La chaîne est fixée à deux sommets de l'arène diamétralement opposés que nous avons repérés par des triangles blancs pour une détection facile (voir figure (6.4)). Les autres billes sont détectées en utilisant la fonction *imfindcircles* de Matlab. A l'issue de cette étape nous recueillons la position des billes des extrémités et une multitude de positions de points (voir figure (6.4-b)) qui ne correspondent pas tous à celles des billes recherchées. Ceci est dû au fait que nous ne sommes pas capables de trouver des paramètres suffisamment restrictifs dans la fonction *imfindcircles* pour ne détecter que les billes. Ainsi, la deuxième étape consiste à trier les positions, à ordonner celles correspondantes aux billes les unes par rapport aux autres.

Par convention nous fixons le centre du point d'attache de la chaîne à son extrémité gauche en position 1 du vecteur chaîne construit au cours de ce processus. Le tri commence par ne considérer que les points dont l'abscisse est supérieure à celle de l'extrémité gauche. Nous parcourons ceux-ci à travers une boucle.

2. A l'intérieur de la boucle, nous incrémentons les positions du vecteur chaîne en nous basant sur deux critères de distances et d'orientations que doivent respecter deux billes successives. Nous commençons par chercher la position du second maillon parmi la liste des points triés dans le sens de la gauche vers la droite de la chaîne. Le premier point de la liste qui vérifiera ces deux critères sera sélectionné comme le second maillon. Nous réitérons de la même manière pour construire le vecteur chaîne, en ajustant les valeurs des critères de distances et d'orientations car ces derniers ne sont pas les mêmes entre le

maillon d'attache et le second. A l'issue de cette boucle, nous obtenons le vecteur chaîne auquel on ajoute à la position finale des coordonnées du maillon de son extrémité droite, en testant de nouveau si les critères de distances et d'orientations sont vérifiés entre les coordonnées des points du dernier vecteur et de l'extrémité droite. Dans la mesure où une multitude de points, autres que ceux correspondant aux disques sont détectés, nous conservons uniquement les vecteurs chaîne ayant une taille correspondant à la chaîne.

En moyenne sur 3600 images par expérience et *a posteriori* la probabilité de détecter correctement l'ensemble des maillons de la chaîne est d'environ de 60%.

Nous disposons donc à chaque pas de temps des coordonnées de l'ensemble des maillons de la chaîne, $c(t) = (x_i(t), y_i(t))$. On définit la membrane effective des maillons qui occuperaient les positions moyennes en temps $(\langle x_i(t) \rangle_t, \langle y_i(t) \rangle_t)$

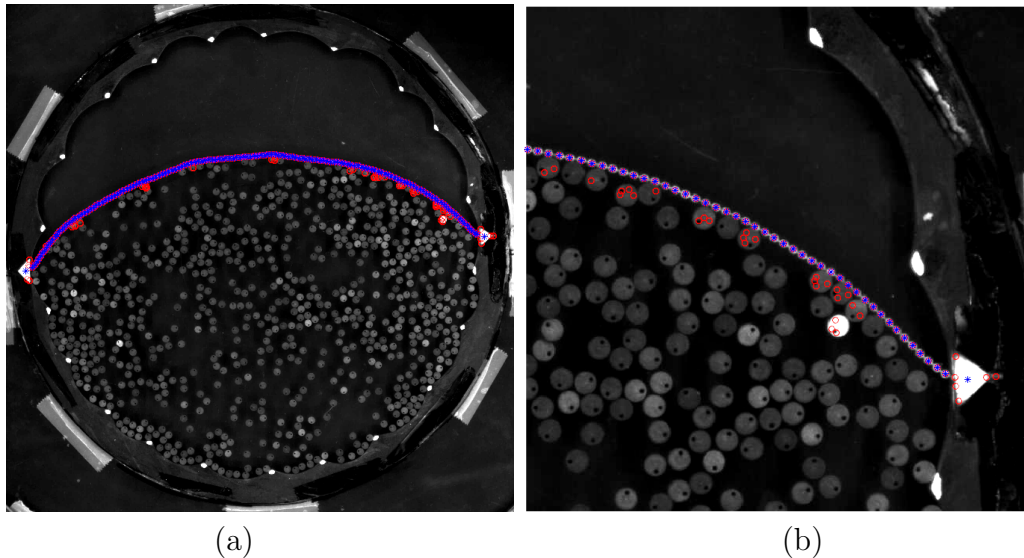


FIGURE 6.4 – **Analyse d'images.** Les cercles rouges sont tous les cercles détectés avec la fonction *imfindcircles*. Les croix bleues correspondent aux positions des billes de la chaîne. (a) : Détection de la chaîne entière. (b) : zoom sur une des extrémités. Le maillon de l'extrémité droite correspond au centre du triangle blanc. On y voit en particulier une multitude de disques détectés.

6.3 Mesure de la pression

Notre objectif est d'estimer la pression qu'exercent les disques au cours du temps sur la chaîne lorsqu'ils sont mis dans un seul compartiment. Puis, à partir de la mesure de la longueur de la membrane effective, il s'agit d'inférer la tension qui s'exerce sur celle-ci, et qui contrebalance la pression linéique le long de la chaîne.

6.3.1 Equilibre mécanique

Sur la figure (6.5-a) on représente un instantané de l'expérience sur lequel nous observons des disques dans le container gauche délimité par la chaîne. Nous superposons sur celle-ci, la position de la membrane effective, de longueur L_{eff} , tirée en ses deux

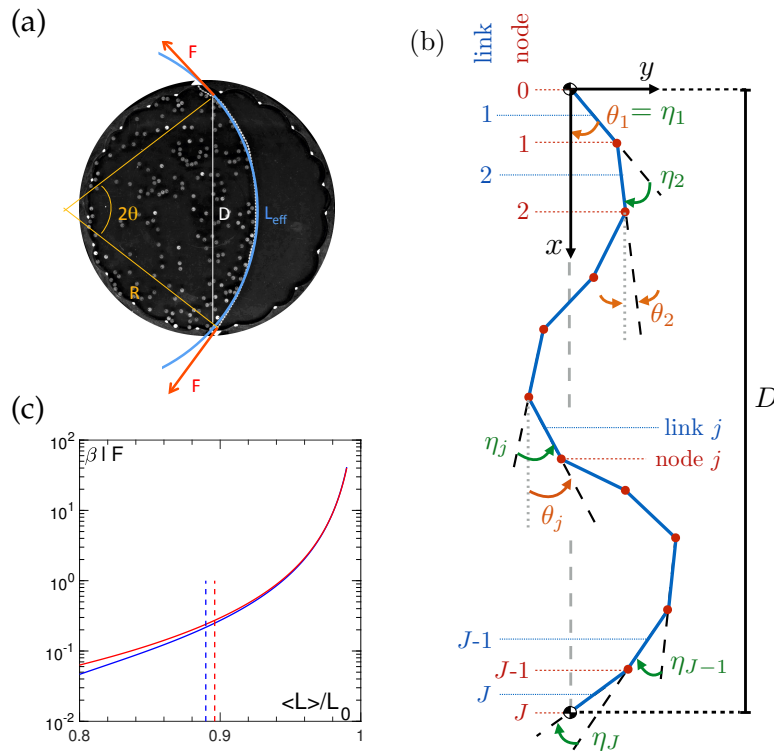


FIGURE 6.5 – **Chaîne effective.** (a) : Membrane effective sous tension ($F = \|\vec{F}\|$) et soumise à la pression Π des disques. (b) : Schéma du polymère. Les positions des maillons sont repérées par les angles θ et l'orientation de deux maillons successifs est noté η . (c) : Loi de comportement. Tension adimensionnée $\beta l F$ en fonction de la longueur moyenne de la chaîne $\langle L \rangle$ rapportée à sa longueur maximale L_0 , pour les deux types de chaînes. Les traits en pointillés indiquent la valeur D/L_0 pour chacune des deux chaînes.

extrémités par une tension de module F . La membrane effective a une courbure unique et constante, caractérisée par son rayon de courbure R , et un angle 2θ .

D'après le schéma de la figure (6.5-a), on suppose une pression linéique homogène Π et une tension radiale de norme constante F . L'équilibre mécanique donne :

$$\Pi \times D = 2F \sin \left(\frac{L_{\text{eff}}}{2R} \right) = 2F \sin (\theta) \quad (6.5)$$

avec D le diamètre de l'arène et L_{eff} la longueur de la membrane effective. Par ailleurs, un calcul de géométrie donne l'équation :

$$\frac{D}{2R} = \sin (\theta) \quad (6.6)$$

avec R , le rayon de courbure de la membrane effective et $L_{\text{eff}} = 2R\theta$. Ensemble, les équations (6.5 et 6.6) donnent :

$$\Pi = \frac{F}{R} \quad (6.7)$$

La question qui se pose à présent est la valeur de la tension F . En estimant la loi de comportement mécanique de la chaîne, donc son élasticité, nous obtiendrons une relation directe entre la tension F et la longueur de la membrane effective. Par une lecture inverse, connaissant L_{eff} nous estimerons la valeur de la tension nécessaire pour obtenir une telle longueur.

6.3.2 Modèle de polymère à l'équilibre soumis à une force

On définit le polymère (voir figure(6.5-b)) le plus fidèlement possible par rapport à la chaîne : son nombre de maillons, les distances et les orientations entre deux maillons successifs (on adaptera ses caractéristiques en fonction de la chaîne que l'on utilise) sont pris identiques aux chaînes de l'expérience. Le polymère est supposé être à l'équilibre thermodynamique plongé dans un bain à la température β^{-1} . L'une de ses extrémités est fixée, tandis que l'autre est soumise à une force dans la direction radiale de norme F . *Via* ce modèle, nous souhaitons estimer l'élasticité de la chaîne (Réf. [56, 41])

La longueur de la chaîne s'écrit :

$$L = l \left[\left(\sum_{j=1}^J \cos (\theta_j) \right)^2 + \left(\sum_{j=1}^J \sin (\theta_j) \right)^2 \right] \quad (6.8)$$

avec $\theta_j = \sum_{i=1}^j \eta_i$. A l'équilibre canonique on définit d'abord sa fonction de partition

$$\frac{Z(\beta l F, J)}{Z_0(J)} = \int_0^J \rho(L, J) \exp (-\beta L F) dL \quad (6.9)$$

où J est constant, et $Z_0(J) = (2\eta_{max})^J$ est le nombre total de configurations lorsque $\beta \rightarrow 0$. La moyenne d'équilibre de sa longueur s'obtient par l'équation :

$$\langle L \rangle = \frac{1}{Z(\beta l F, J)} \int_0^J \rho(L, J) L \exp(-\beta L F) dL \quad (6.10)$$

ce qui peut s'écrire comme

$$\langle L \rangle = \frac{1}{\beta} \left[\frac{\partial}{\partial F} \ln(Z) \right]_J. \quad (6.11)$$

Finalement, nous obtenons une relation directe entre la longueur moyenne du polymère $\langle L \rangle$ et la norme F de la tension.

On souhaite calculer la fonction de partition $Z = \int \rho(L) \exp(-\beta l F) dL$. Pour ce faire, on évalue d'abord la densité d'état $\rho(L)$ de chaîne de longueur L , attachée à une extrémité et à l'autre extrémité libre de fluctuer à la température T (soumise à aucune force). Le calcul de $\rho(L)$ se fait en Monte-Carlo où l'on réalise 5.10^9 tirages de conformations de polymères dont une extrémité est fixe et l'autre est libre (semi-libre). Les angles fixant l'orientation entre deux monomères successifs sont pris uniformément distribués dans l'intervalle $[-\eta_{max}, \eta_{max}]$, avec un *bin* de $\delta\eta = 10^{-3}$ rad. Nous avons tiré autant de configurations pour augmenter la statistique d'observations d'états où le tirage de polymères tendus est rare. En effet, la longueur effective de la membrane effective L_{eff} est comprise entre le diamètre D de l'arène et sa valeur maximale L_{max} . Ainsi les tailles que l'on espère tirer correspondent à des états où le polymère est assez tendu.

A l'issue de ces simulations on obtient la distribution $\rho(L)$ de longueur de polymère semi-libre. On la multiplie ensuite par le poids de Boltzmann correspondant au cas où la chaîne serait tirée, puis on intègre sur L . En découle alors le calcul de la moyenne thermodynamique $\langle L \rangle(F)$. On représente sur la figure (6.5-c) la loi de comportement mécanique $\beta l F = \beta l \mathcal{F} \left(\frac{\langle L \rangle}{D} \right)$ du polymère, soumis à une tension de norme F adimensionnée. L'inversion de cette loi de comportement nous permet de déterminer la tension adimensionnée $\beta l F$ exercée dans la membrane effective de longueur L_{eff} . En découle la pression adimensionnée Π^* , $\Pi^* = \beta \Pi a = \frac{a}{lR} \mathcal{F} \left(\frac{L_{eff}}{D} \right)$, où $a = \pi d^2/4$ est l'aire d'une particule. Enfin remarquons que les lois de comportement pour les deux chaînes effectives sont similaires.

6.4 Expériences avec $N_1 \neq 0$ et $N_2 = 0$

6.4.1 Forme de la chaîne en fonction de N_1

Sur la figure (6.6-i1) nous représentons la forme que prend la chaîne effective construite à partir de la chaîne 1 pour les ISO et les SPP, pour les différentes valeurs de N_1 .

En l'absence de disques ($N_1 = 0$), la membrane effective épouse quasiment le diamètre.

Dans le cas des disques ISO, pour des valeurs $N_1 \in [100 - 300]$ la forme de la chaîne est quasiment un arc de cercle mais présente une légère asymétrie gauche/droite que l'on attribue à des effets d'inhomogénéités de densité. Au delà ($N_1 > 300$) la chaîne dessine un bel arc de cercle, bien symétrique.

Concernant les SPP, on observe un comportement similaire mais il demeure une légère asymétrie même aux plus fortes tensions, ce qui suggère aussi une inhomogénéité de densité le long de la chaîne. On remarque surtout que la chaîne se tend plus facilement pour un nombre de disques SPP inférieur à celui des ISO, ce qui signifie que pour obtenir une même pression pour deux espèces de disques, il faut mettre un nombre de disques ISO plus important que celui de SPP.

Connaissant le nombre de disques N_1 à gauche de la chaîne et la forme de celle-ci, nous aimerions avoir accès à la fraction surfacique Φ .

Mesure de la fraction surfacique Φ .

La fraction surfacique pour la cellule de gauche ou de droite est donnée par la formule usuelle $\Phi_{(\text{gauche,droite})} = N_{(\text{gauche,droite})}a/A_{(\text{gauche,droite})}$, avec a l'aire d'une particule ($\pi d^2/4$), et $A_{(\text{gauche,droite})}$ l'aire de chacune des cellules. D'après la formule analytique de l'arène, nous savons que son aire vaut $A_t = A_{\text{gauche}} + A_{\text{droite}} = 48140 \text{ mm}^2$ et son diamètre est $D = 251.1 \text{ cm}$. Sachant que $A_{\text{gauche}} \sim A_{\text{droite}}$ pour $N_1 = N_2 = 0$, l'aire de la cellule de gauche sera donnée par $A_{\text{gauche}} = A_t/2 + \delta A$, où δA est l'aire comprise entre l'arc de cercle de courbure R formée par la chaîne effective et la corde formée par le diamètre D de l'arène. Sur le schéma de la figure (6.7), l'aire δA correspond à l'aire coloriée en rouge, située entre la chaîne bleue et la corde de longueur D . $\delta A = R^2\theta - \frac{Dh}{2} = R^2 \arcsin\left(\frac{D}{2R}\right) - \frac{D\sqrt{4R^2-D^2}}{4}$.

6.4.2 Recherche d'une équation d'état

Sur la figure (6.6-i2) nous représentons les valeurs de Π^* en fonction de Φ mesurées pour les disques ISO représentés en couleur bleue et pour les disques SPP en couleur rouge. Les points ronds ont été mesurés avec la chaîne 1, les carrés pour la chaîne 2.

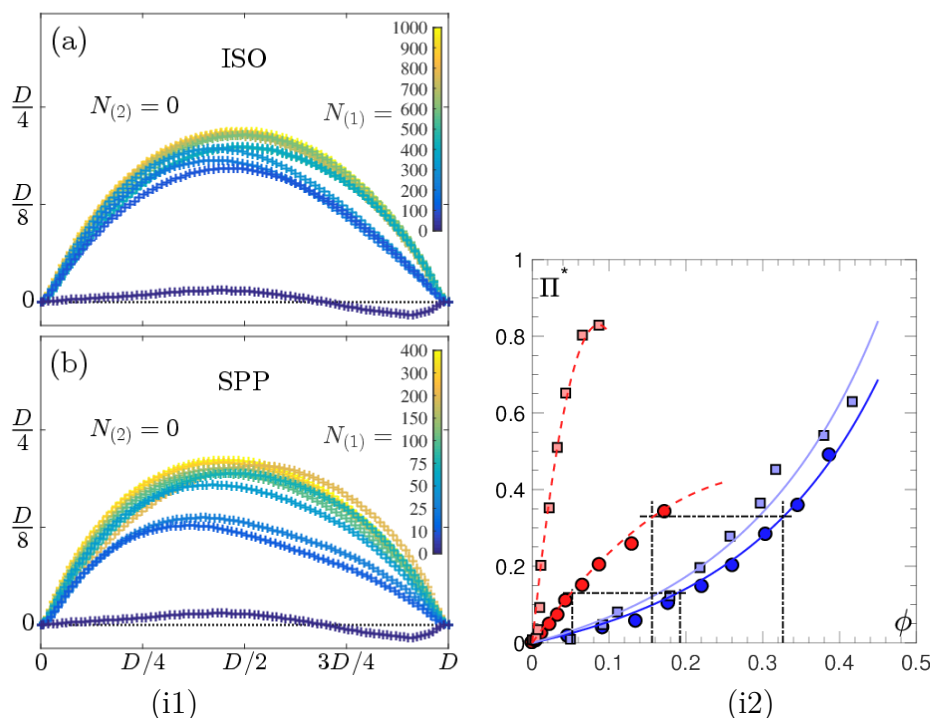


FIGURE 6.6 – **Pression en fonction de la densité.** (i1)-(a) : Forme de la chaîne-1 pour différents nombres de disques ISO. (i1)-(b) : pour les disques SPP. (i2) : Les symboles ronds et carrés correspondent respectivement à la mesure de la pression pour la chaîne 1 et la chaîne 2. Les courbes rouges codent pour les SPP, les bleues pour les ISO. Les pointillés noirs indiquent les valeurs en densité pour lesquelles deux densités d’ISO et de SPP développent la même pression. Les traits bleus en plein représentent l’ajustement des points par l’équation de Hendersen. Les traits en pointillés rouges sont un ajustement des points par un développement à l’ordre 2 en ϕ .

Ce que l’on avait remarqué lors de l’analyse de la forme de la chaîne 1 se confirme à la lecture de cette courbe : les pressions des SPP croissent plus vite que les ISO. En général, il faut $N_{SPP} < N_{ISO}$ pour lire la même pression, quelle que soit la chaîne utilisée.

On observe par ailleurs pour les ISO que les deux courbes se juxtaposent, suggérant que les disques exercent la même pression à tout Φ , peu importe la chaîne. Pour les SPP, les courbes ne se superposent clairement pas, ce qui indique un couplage entre les disques SPP et la chaîne impactant la mesure de Π

Équation d’état pour les ISO.

Pour des disques durs d’équilibre, l’équation d’état $P(\Phi)$ est donnée par la formule de Hendersen (Réf. [37]). Dans la mesure où les disques ISO se comportent à bien des égards comme des disques durs d’équilibre, bien qu’ils soient placés hors d’équi-

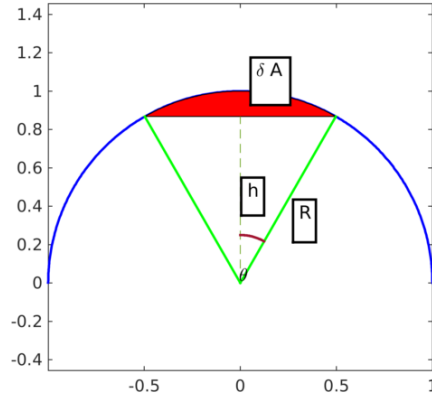


FIGURE 6.7 – **Mesure de la fraction surfacique Φ .** La chaîne est modélisée par l'arc de cercle bleu. Les points d'attache de la chaîne sont aux deux intersections de l'arc de cercle avec le segment de droite de longueur D .

libre, nous tentons d'ajuster les courbes par cette équation d'état. Pour cela, nous supposons que l'on peut définir deux températures effectives pour les chaînes ($\beta_{1,2}$) et pour les disques ISO (β_{ISO}) qui *a priori* sont différentes. On ajuste les points expérimentaux pour les disques ISO par l'équation :

$$P_{HD}^* = \beta_{1,2} P_{ISO} a = \frac{\beta_{1,2}}{\beta_{ISO}} \Phi \frac{1 + \alpha \Phi^2}{[1 - \Phi]^2} \quad (6.12)$$

avec $\alpha = 7/3 - 4\sqrt{3}/\pi$. On trouve $\beta_1/\beta_{ISO} = 0.45$ et $\beta_2/\beta_{ISO} = 0.55$. Le fait qu'elles soient ajustables par la même équation en Φ signifie que les disques durs vérifient la même équation d'état. Cette dernière est décrite pour des disques durs d'équilibre. Ceci constitue alors un résultat remarquable en soi qui nous conforte dans le choix d'une description d'équilibre des disques ISO, mais aussi dans le choix de la chaîne.

Pression pour les SPP.

La pression mécanique Π n'est donc pas une variable d'état. On peut néanmoins ajuster un développement du viriel à l'ordre 2 en Φ pour chacune des deux courbes qui permet au moins de capturer les effets de corrélations dans les interactions de paires. L'équation ajustée est la suivante :

$$\Pi_{spp} = \beta \Pi_{spp} a = \frac{\beta}{\beta_{spp}} \Phi (1 + b_{1,2} \Phi) + O(\Phi^3). \quad (6.13)$$

On trouve respectivement pour la chaîne 1 et 2 un rapport des températures $\frac{\beta_1}{\beta_{spp}} = 6$ et $\frac{\beta_2}{\beta_{spp}} = 35$ et $b_1 = -1.6$ et $b_2 = -5.8$.

Outre le fait que les rapports de températures sont différents, on note surtout un coefficient b négatif, ce qui pourrait s'interpréter comme la signature d'une attrac-

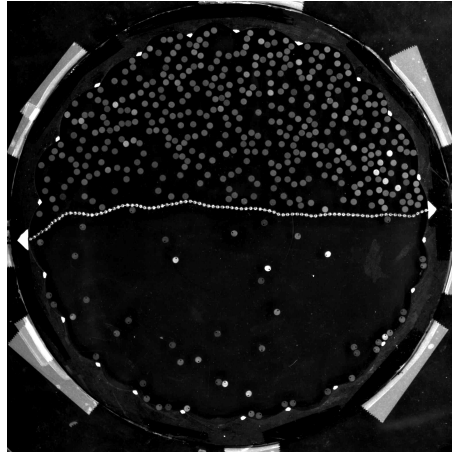


FIGURE 6.8 – **Équilibre de la chaîne.** 400 disques ISO ont été mis à gauche de la chaîne représentée en haut sur la figure, et 50 disques SPP à droite de la chaîne.

tion effective entre les disques SPP. Un coefficient b négatif fait écho à celui mesuré dans l'expérience des particules janus présentée dans l'introduction (Réf. [31]).

6.5 Expériences avec $N_1 \neq 0$ et $N_2 \neq 0$

6.5.1 Équilibre entre SPP et ISO

Nous commençons d'abord par mettre de part et d'autre de la chaîne 1 un nombre de disques SPP ($N_1 = N_{SPP}$) et ISO ($N_2 = N_{ISO}$) de façon à lire la même pression pour la chaîne 1. (voir figure (6.8)). Puis, nous conservons ce nombre de disques constant, mais remplaçons la chaîne 1 par la deuxième.

Comme attendu, la chaîne 1 fluctue peu autour du diamètre de l'arène lorsque nous mettons $N_{SPP} = 300$ et $N_{ISO} = 627$, puis, dès que la chaîne 2 est installée, les disques SPP exercent une pression plus importante sur la chaîne que les disques ISO. L'équilibre autour du diamètre est alors rompu. (voir films). Il est nécessaire d'enlever 125 disques SPP pour que l'équilibre se rétablisse avec $N_{SPP} = 75$ et $N_{ISO} = 627$

Cette expérience illustre parfaitement que les SPP se couplent différemment aux deux chaînes et développent des pressions mécaniques très différentes selon la chaîne utilisée.

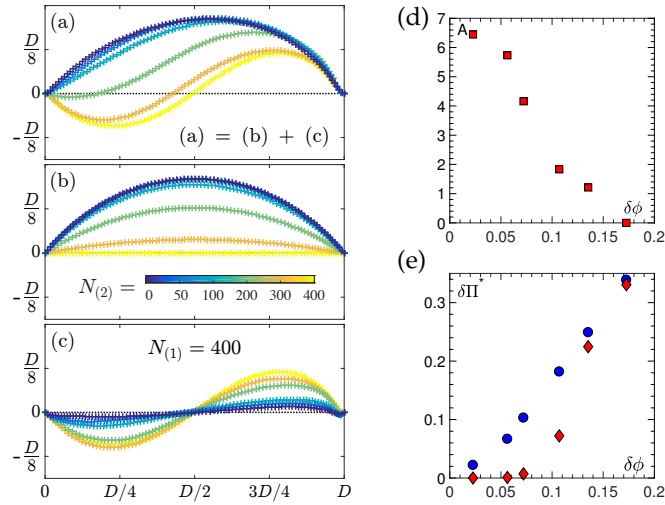


FIGURE 6.9 – **Instabilité de la chaîne.** (a) : Décomposition de la forme de la chaîne selon un mode fondamental (figure (b)) et un mode perturbatif (figure (c)). On représente l'évolution de la décomposition de cette forme en fonction du nombre de disques polaires à $N_1 = 400$ fixé et $N_2 \in [0 - 400]$. (d) : Amplitude A du mode perturbatif en fonction de la différence de fraction surfacique $\delta\phi$ de part et d'autre de la chaîne. (e) : Évolution de la différence de pression $\delta\Pi^*$ en fonction de $\delta\phi$, mesurée de deux manières différentes. En bleu par la méthode géométrique et en rouge par le développement limité de $\Pi^*(\phi)$.

6.5.2 Instabilité de la chaîne, avec des SPP de part et d'autre de la chaîne

Pour finir, nous avons fait une série d'expériences en utilisant uniquement la chaîne 1 et en mettant de part et d'autre de la chaîne un nombre de SPP variable.

Nous commençons par montrer le comportement de la chaîne (voir figure (6.9)) où l'on a mis $N_1 = N_2 = 400$ SPP. Naïvement, nous nous attendrions à ce que la chaîne se stabilise au centre. Ce n'est pas le cas. La chaîne développe un motif en "S" qui laisse penser à une instabilité du même genre que celle observée dans le cas d'une simulation numérique d'un filament plongé dans un bain de particules actives browniennes [63].

Pour aller plus loin dans la compréhension de cette instabilité, nous avons changé le nombre de disques des deux côtés de la chaîne parmi les valeurs suivante [100, 200, 300, 400], tout en maintenant $N_2 \leq N_1$. Pour tous les couples (N_1, N_2) avec $N_1 = N_2$, nous observons la forme "S". Cependant, pour des valeurs de couples différentes, la chaîne change progressivement de forme.

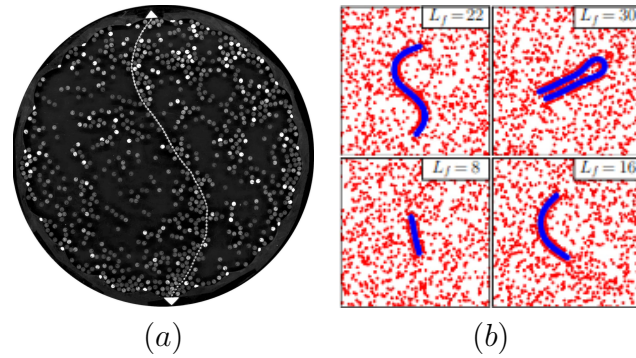


FIGURE 6.10 – **Pression mécanique exercée par des particules actives sur une membrane flexible.** Extraite de la réf. [63]. (a) : Forme en “S” de la chaîne avec 400 disques SPP à gauche et à droite. (b) : Instabilité observée pour un filament plongé dans un bain de particules actives ABP (points rouge). Résultats issus d’une simulation numérique extraite de la réf. [63]. Les particules actives browniennes sont représentées par des points rouge. Elles n’interagissent pas ensemble, mais interagissent selon un potentiel harmonique répulsif avec un filament (en bleu). En fonction de sa longueur L_f , le filament adopte une configuration différente due à une instabilité générée par les particules actives.

Nous avons ainsi décomposé la forme de la chaîne en deux modes : un mode fondamental correspondant à un arc de cercle, et un mode perturbatif sinusoïdal d’amplitude A . On montre sur la figure (6.9) l’évolution de ces deux modes. On y a fixé $N_1 = 400$ et avons fait varier N_2 dans l’intervalle $[0 - 400]$. Nous représentons sur la figure (6.9-d) l’évolution de l’amplitude A du mode perturbatif en fonction de la différence de fraction surfacique $\delta\phi = \phi_1 - \phi_2$. L’amplitude A est maximale quand $\delta\phi \rightarrow 0$.

L’instabilité est d’autant plus forte que le nombre de particules de part et d’autre de la chaîne 1 est similaire. Au contraire, la présence d’une différence de pression semble atténuer l’instabilité.

6.6 Conclusion

Nous avons étudié expérimentalement la pression mécanique qu'exercent les disques ISO ou SPP sur une chaîne. A partir des configurations que prend la chaîne au cours du temps nous construisons une chaîne effective. Par ailleurs, nous nous sommes donnés un modèle d'équilibre décrivant l'élasticité de la chaîne. D'une part, grâce au modèle qui lie la tension dans la chaîne à la mesure de la longueur L_{eff} de la chaîne effective et d'autre part, grâce à l'équilibre mécanique, nous en déduisons une mesure de la pression mécanique.

Pour les disques symétriques (ISO) le résultat est tout à fait remarquable et pas forcément évident *a priori* : la pression mécanique obéit à l'équation d'état des disques durs d'équilibre.

Dans le cas des disques polaires (SPP), la pression mécanique n'est pas une bonne variable d'état pour les disques polaires vibrés, puisqu'elle dépend de la nature de la chaîne utilisée pour la mesure. Néanmoins, nous notons que les courbures des deux mesures de pression dans le cas des SPP et des ISO sont différentes.

Enfin, nous reportons une instabilité de la chaîne lorsqu'elle est plongée dans un bain de SPP, très similaire à celle reportée dans les simulations d'un modèle de disques brownien actifs (Réf. [63]). Dans cet article, les auteurs étudient *via* une simulation la pression mécanique exercée par des particules actives browniennes sur un objet flexible tel qu'un filament. Les particules actives n'interagissent pas ensemble et aucun couple ne s'exerce sur elles. Elles interagissent uniquement par répulsion avec le filament. Ce dernier est caractérisé par une énergie de courbure et d'élongation. Ils constatent que le long du filament, la densité et la pression normale ne sont pas uniformes. Ceci a pour conséquence de générer une instabilité. Le filament, plongé dans le bain, peut prendre différentes configurations comme représentées sur la figure (6.10-b).

Chapitre 7

Conclusion

Lorsque j'ai démarré cette thèse, aucun résultat expérimental n'avait été reporté concernant la cristallisation et la phase dense ordonnée de particules actives. Cette thèse expérimentale est sans doute la première à s'être consacrée à ce sujet.

En introduction, nous avons passé en revue les rares articles qui traitaient ce sujet d'un point de vue numérique ainsi que ceux, un peu plus nombreux, qui concernaient la transition vitreuse d'un liquide actif. La principale conclusion qui se dégage de ces études, est que les transitions vers les phases solides de particules actives dures sont repoussées vers des valeurs plus élevées de densité.

Pour étudier la transition de cristallisation de disques durs actifs, nous avons repris le système expérimental mis en place par Julien Deseigne, après l'avoir adapté afin assurer une bonne reproductibilité expérimentale et de faciliter la manipulation des disques à haute fraction surfacique.

Les travaux de Julien Deseigne ont montré que les disques durs polaires vibrés alignent la direction de leur déplacement et forment une phase de clusters polaires. La simulation numérique et l'étude théorique d'un modèle qui reproduisait très bien le système expérimental ont montré que la dynamique des disques donnait naissance à un alignement effectif, qui à son tour donne lieu à une transition de mouvement collectif.

Au-delà d'un décalage en densité de la transition de cristallisation, nous nous sommes demandé quels pouvaient être les autres effets qualitatifs significatifs de l'activité sur la phase dense, que ce soit du point de vue de sa structure ou de sa dynamique. En particulier, à suffisamment haute densité, les très nombreuses collisions pourraient induire une diffusion effective telle que l'activité n'ait essentiellement plus d'effet. La question du rôle de l'alignement dans ces processus se pose également.

En ce qui concerne la phase liquide, nous avons montré (Ch 5), que même en

l'absence de mouvements collectifs, c'est à dire à suffisamment faible densité, la pression mécanique exercée par les disques polaires sur une membrane dépend de l'élasticité effective de la membrane. En ce sens, elle n'est pas une variable d'état. Au regard des prédictions théoriques, ceci se comprend comme étant la conséquence du couple exercé sur les disques par le substrat, dès que leur déplacement n'est pas aligné avec leur polarité. Par ailleurs, nous avons confirmé l'observation numérique selon laquelle le couplage entre la pression et la courbure de la membrane, via le champ de densité conduit à une instabilité de membrane.

En ce qui concerne les phases denses, on peut résumer l'ensemble de nos observations sur le diagramme figurant sur la figure 7.1.

Nous observons quatre phases distinctes.

A suffisamment faible fraction surfacique, le système est un liquide actif, non polaire, mais présentant des fluctuations de densité plus importantes qu'à l'équilibre. La dynamique est super-diffusive.

A partir de $\Phi \simeq 0.71$, le système se présente sous la forme d'une phase « liquide de clusters » : de nombreux clusters, denses, et compacts se forment. Ces clus-

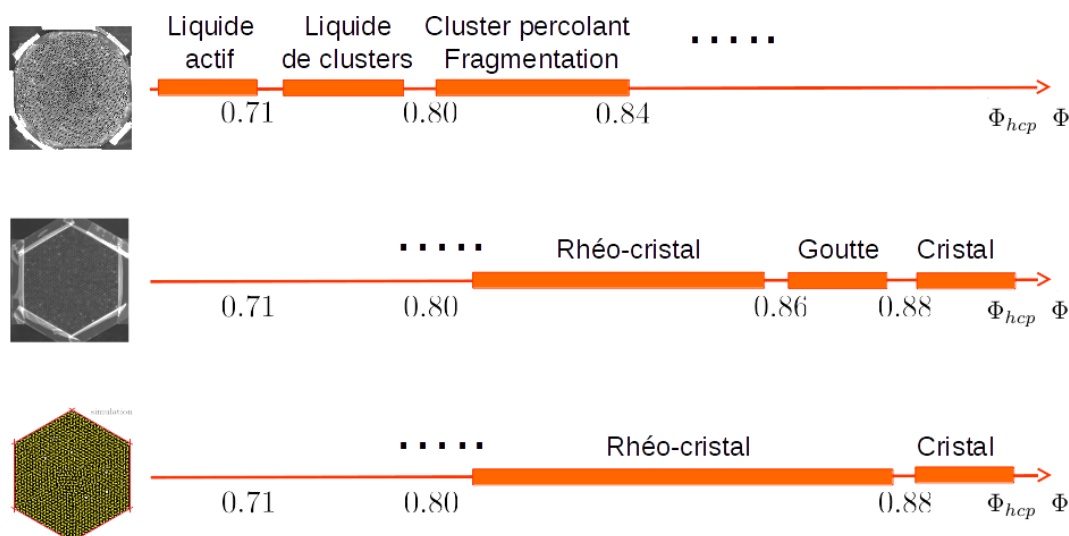


FIGURE 7.1 – **Diagramme des phases de disques polaires à bruit et à alignement fixés dans la direction Φ** , dans nos conditions expérimentales, nous reportons ce diagramme. Le liquide hétérogène laisse place à un liquide de clusters à $\Phi \sim 0.71$. Le liquide de clusters s'étend jusqu'à 0.80 environ. Au-delà deux phases sont observées selon que le système est frustré ou non. Sans frustrations, le cristal coule et les particules s'alignent. Avec frustration, on observe aussi cette phase, mais elle s'interrompt pour former un cristal statique qui relaxe en raison de la présence d'une goutte de défauts. Pour des Φ supérieurs, le cristal apparaît et se maintient. Cependant, dans la limite thermodynamique le cristal est repoussé à $\Phi_{hcp} = \frac{\pi}{2\sqrt{3}}$.

ters présentent individuellement une structure ordonnée mais il n'y a pas d'ordre global. Par ailleurs les clusters sont non-permanents. On assiste à de nombreuses fragmentations et agrégations de ceux-ci, donnant lieu à une dynamique spatio-temporelle très intermittente, et en moyenne super-diffusive. La taille moyenne des clusters croît avec la fraction surfacique. A partir de $\Phi \simeq 0.80$, un cluster domine l'ensemble du système. Un ordre orientationnel global apparaît. Mais il n'y a pas d'ordre translationnel sur l'ensemble du système. De très nombreux défauts de type dislocation l'empêchent de se développer. La dynamique reste super-diffusive. Au fur et à mesure que la fraction surfacique augmente, l'ordre structurel est de plus en plus prononcé. L'organisation structurale du système s'accompagne d'une organisation de sa dynamique, et une rotation d'ensemble s'installe. En l'absence de frustration, c'est-à-dire lorsque les conditions limites et le nombre de particules respectent l'ordre hexagonal, un cristal en rotation se met peu à peu en place. Cet état de plus en plus ordonné, mais animé d'une rotation globale se maintient jusqu'à $\Phi \simeq 0.88$. En présence de frustration, la rotation globale ne se maintient que jusqu'à $\Phi \simeq 0.85$; la structure relaxe pour autant sur des temps assez court, via la super-diffusion d'une goutte de volume libre.

A partir de $\Phi \simeq 0.88$ un cristal statique se forme enfin. Toutefois, l'étude numérique des effets de taille finie nous indique que dans la limite thermodynamique, le cristal en rotation se maintient jusqu'à la fraction correspondant à l'empilement hexagonal compact $\Phi = \frac{\pi}{2\sqrt{3}}$. Signalons enfin qu'en présence de condition limite périodique, la rotation est remplacée par une translation.

Les observations décrites ci-dessus répondent très clairement à la première question que nous nous posons. Du moins en ce qui concerne le système étudié au cours de cette thèse, la combinaison de l'activité et de l'alignement conduit à des comportements très différents de ceux observés à l'équilibre, jusqu'aux densités les plus élevées.

On peut se demander quelle est la généralité de ce diagramme. D'une part, rappelons qu'expérimentalement il est difficile faire varier l'activité des disques de façon contrôlée. En conséquence, ce diagramme n'a pour le moment été étudié qu'à un seul Péclet. D'autre part, les disques utilisés présentent une propriété d'alignement que nous n'avons pas non plus fait varier. Il s'agit donc d'une vision très partielle du diagramme des phases complet, qui en principe comporte trois paramètres de contrôle pour des disques durs : la densité, l'activité et l'alignement.

Obtenir un tel diagramme n'est pas à la portée des expériences, et nécessitera de faire appel aux simulations numériques. On peut néanmoins émettre quelques hypothèses :

Une première hypothèse concerne le rôle de l'alignement. On peut penser qu'en l'absence d'alignement, un état ordonné existerait néanmoins en lieu et place du cristal en rotation. De ce point de vue, l'activité a deux effets : elle repousse la

transition vers la phase ordonnée à des valeurs de ϕ plus importantes et elle favorise la présence de clusters denses au sein de la phase liquide. A ce sujet, il serait intéressant de savoir si cela présente une connexion avec la séparation de phase induite par la motilité (MIPS) observée à plus haut Péclet.

Une seconde hypothèse concerne la nature de la phase ordonnée. Ceci est directement lié à la nature des défauts présents. Tout semble indiquer que l'activité (en tout cas dans le système étudié) promeut la formation de dislocations qui détruisent l'ordre transactionnel. De ce point de vue, la phase ordonnée serait une phase hexatique et non strictement cristalline. Pour autant, la phase ordonnée comporte beaucoup moins de défauts quand elle se polarise et coule d'un seul bloc. Cette polarisation de la phase ordonnée n'est évidemment possible qu'en présence d'alignement. D'une certaine façon, l'alignement réduit le nombre de collisions, donc le bruit et les excitations qui en découlent. Il n'est donc pas exclu que l'alignement restaure la phase cristalline.

Je conclurai en disant que la cristallisation du système de disques durs autopropulsés que nous avons étudiée, s'est avérée d'une richesse au départ insoupçonnée. Finalement, l'étude de la cristallisation nous aura occupés durant l'ensemble de cette thèse. Nous venons de le voir, il reste néanmoins encore beaucoup à faire avant d'accéder à une compréhension globale du diagramme des phases. Enfin, tout reste à faire concernant les phases denses désordonnées. La matière active dense nous réserve donc certainement encore de belles surprises.

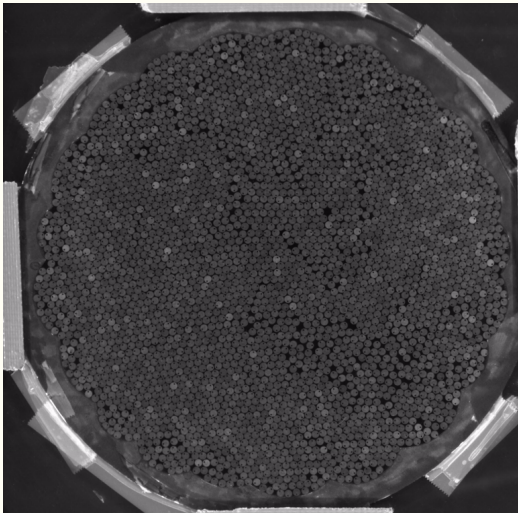
Annexes

annexes

L'ensemble des films proposés en annexes sont visibles sur la page [youtube/-guillaume briand](#). (Réf. [33])

Films associés au chapitre 3

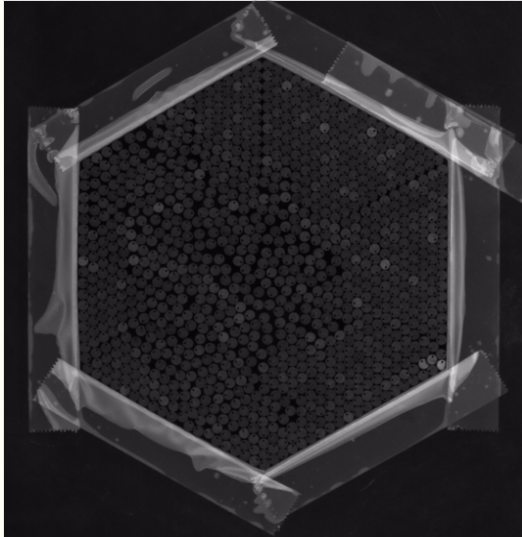
Haute fraction surfacique dans la fleur



Deux vidéos de particules isotropes et polaires à quasiment la même fraction surfacique ($\Phi \sim 0.80$). Tandis que les particules **isotropes** forment un cristal, les **polaires** sont dans un régime de forte intermittence de liquide de « clusters ».

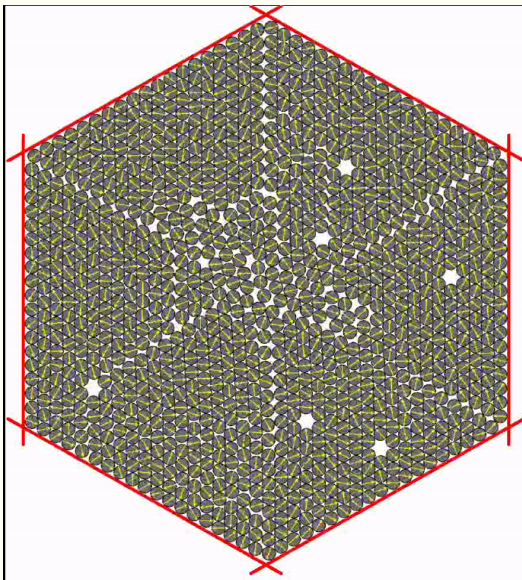
Films associés au chapitre 4

Expériences dans l'hexagone



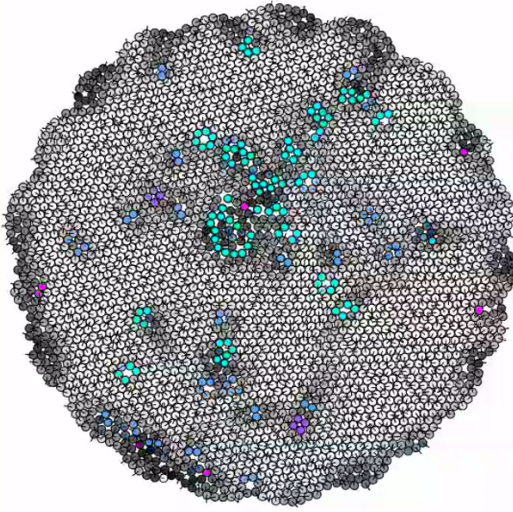
Pour les particules isotropes à **1141**, **1085**, **1027**, et pour les particules polaires, **1135**, **1104**, **1095**. Pour les particules isotropes, le cristal est bien formé, sans défauts, si le nombre de particules respecte la symétrie hexagonale, sinon un cristal avec des défauts gelés se forme. Pour les polaires on y voit les régimes du cristal tournant, de la « goutte », et du cristal stable.

Simulations dans l'hexagone



Seules les particules polaires ont été simulées, selon le modèle décrit dans le chapitre 1. La vidéo à **1104** est réalisée avec des paramètres microscopiques tels que les particules développent une dynamique collective semblable aux expériences. La vidéo à **1141** particules, donc pour un nombre commensurable avec la symétrie hexagonale, est réalisée sans bruit, Les particules pouvant s'aligner, ceci a pour conséquence qu'elles se mettent à tourner.

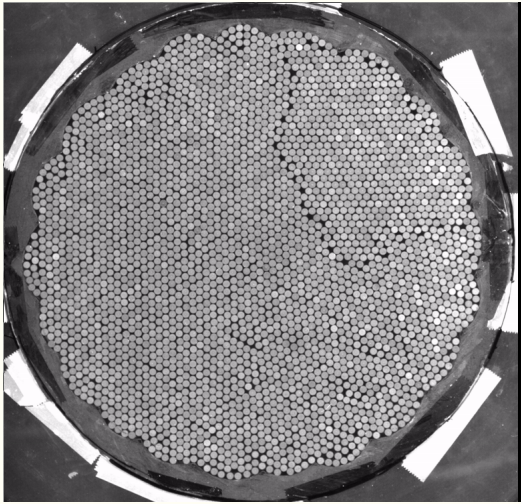
Dynamique des défauts



Sur ces vidéos nous avons représentés les disques en couleurs en fonction de leur coordinance. En blanc, les disques ayant 6 voisins, et en couleurs les disques avec un nombre de voisins différents. Par ailleurs, les flèches représentent la polarité des disques. On s'aperçoit à quel point les défauts sont présents alors même que la fraction surfacique est grande ($\Phi \sim 0.80$), et à quel point ils se mouvent rapidement dans des zones de la structure cristalline.

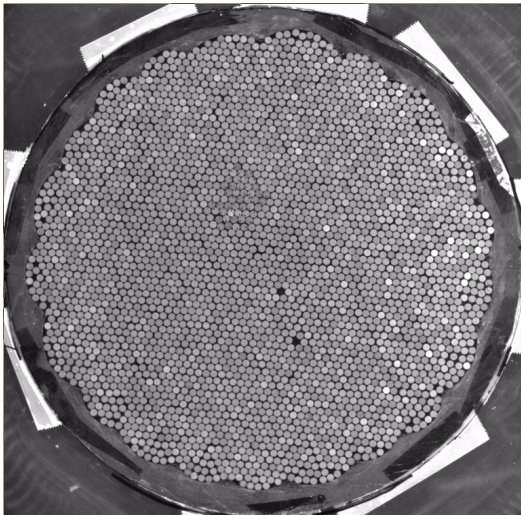
Films associés au chapitre 5

Joint de grains dopé avec des SPP



On montre trois **vidéos** correspondantes aux trois états différents de l'expérience au cours de laquelle un joint de grains s'est d'abord stabilisé, puis s'est rétracté peut être dû à l'influence des disques polaires.

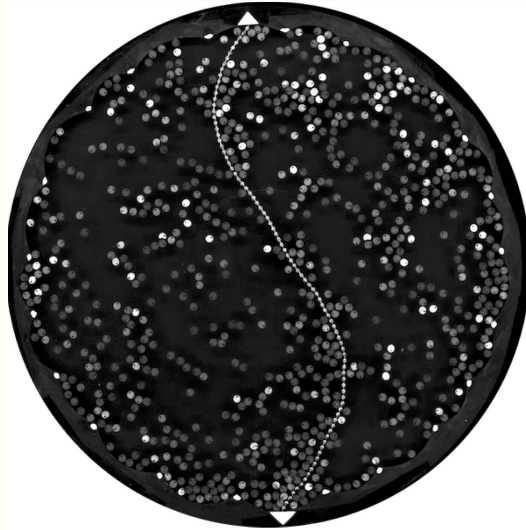
Dopage d'un cristal ISO équilibré avec des SPP regroupés



La **première** vidéo correspond à l'expérience d'équilibration du cristal de disques durs ISO, la **seconde** correspond est celle où l'on a remplacé des ISO par des SPP concentrés au même endroit.

Films associés au chapitre 6

Mesure de la pression & instabilité



On montre deux vidéos, la première où l'on a mis des disques SPP seulement sur un côté de la chaîne. On voit alors comment la chaîne se courbe dû à la pression exercée par les disques. La seconde vidéo correspond au cas où l'on a mis de part et d'autre de la chaîne des disques SPP en nombre égal, on voit comment une instabilité en "S" prend forme.

Bibliographie

- [1] Tim J Atherton and Darren J Kerbyson. Size invariant circle detection. *Image and Vision computing*, 17(11) :795–803, 1999.
- [2] Denis Bartolo. Active-matter thermodynamics under pressure. *Physics*, 10 :78, 2017.
- [3] RJ Baxter. Percus–yevick equation for hard spheres with surface adhesion. *The Journal of Chemical Physics*, 49(6) :2770–2774, 1968.
- [4] Clemens Bechinger, Roberto Di Leonardo, Hartmut Löwen, Charles Reichhardt, Giorgio Volpe, and Giovanni Volpe. Active particles in complex and crowded environments. *Reviews of Modern Physics*, 88(4) :045006, 2016.
- [5] Etienne Bernard. *Algorithms and applications of the Monte Carlo method : Two-dimensional melting and perfect sampling*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2011.
- [6] Etienne P Bernard and Werner Krauth. Two-step melting in two dimensions : first-order liquid-hexatic transition. *Physical review letters*, 107(15) :155704, 2011.
- [7] Ludovic Berthier. Nonequilibrium glassy dynamics of self-propelled hard disks. *Physical review letters*, 112(22) :220602, 2014.
- [8] Eric Bertin, Michel Droz, and Guillaume Grégoire. Boltzmann and hydrodynamic description for self-propelled particles. *Physical Review E*, 74(2) :022101, 2006.
- [9] Dapeng Bi, Xingbo Yang, M Cristina Marchetti, and M Lisa Manning. Motility-driven glass and jamming transitions in biological tissues. *Physical Review X*, 6(2) :021011, 2016.
- [10] Julian Bialké, Thomas Speck, and Hartmut Löwen. Crystallization in a dense suspension of self-propelled particles. *Physical review letters*, 108(16) :168301, 2012.
- [11] Guillaume Briand, Michael Schindler, and Olivier Dauchot. A flowing crystal of self-propelled particles. *arXiv preprint arXiv :1709.03844*, 2017.
- [12] Antoine Bricard, Jean-Baptiste Caussin, Nicolas Desreumaux, Olivier Dauchot, and Denis Bartolo. Emergence of macroscopic directed motion in populations of motile colloids. *Nature*, 503(7474) :95–98, 2013.

- [13] Ivo Buttinoni, Julian Bialké, Felix Kümmel, Hartmut Löwen, Clemens Bechinger, and Thomas Speck. Dynamical clustering and phase separation in suspensions of self-propelled colloidal particles. *Physical review letters*, 110(23) :238301, 2013.
- [14] Raphaël Candelier. *Dynamics and Structure close to the Glass and Jamming transitions; Experiments and Simulations*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2009.
- [15] Michael E Cates and Julien Tailleur. Motility-induced phase separation. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, 6(1) :219–244, 2015.
- [16] David Chandler. Introduction to modern statistical mechanics. *Introduction to Modern Statistical Mechanics, by David Chandler, pp. 288. Foreword by David Chandler. Oxford University Press, Sep 1987. ISBN-10 : 0195042778. ISBN-13 : 9780195042771*, page 288, 1987.
- [17] Rowley Christopher.
- [18] E Roy Davies. *Machine vision : theory, algorithms, practicalities*. Elsevier, 2004.
- [19] Julien Deseigne. *Model experiment of a polar active fluid*. Theses, Université Paris-Diderot - Paris VII, November 2010.
- [20] Julien Deseigne, Olivier Dauchot, and Hugues Chaté. Collective motion of vibrated polar disks. *Physical review letters*, 105(9) :098001, 2010.
- [21] Julien Deseigne, Sebastien Leonard, Olivier Dauchot, and Hugues Chate. Vibrated polar disks : spontaneous motion, binary collisions, and collective dynamics. *Soft Matter*, 8 :5629–5639, 2012.
- [22] Sven Deuschländer, Patrick Dillmann, Georg Maret, and Peter Keim. Kibble–zurek mechanism in colloidal monolayers. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 112(22) :6925–6930, 2015.
- [23] Bertrand Duplantier, Thomas C Halsey, and Vincent Rivasseau. *Glasses and Grains : Poincaré Seminar 2009*, volume 61. Springer Science & Business Media, 2011.
- [24] Michael Engel, Joshua A Anderson, Sharon C Glotzer, Masaharu Isobe, Etienne P Bernard, and Werner Krauth. Hard-disk equation of state : First-order liquid-hexatic transition in two dimensions with three simulation methods. *Physical Review E*, 87(4) :042134, 2013.
- [25] Yaouen Fily and M Cristina Marchetti. Athermal phase separation of self-propelled particles with no alignment. *Physical review letters*, 108(23) :235702, 2012.
- [26] Étienne Fodor and M Cristina Marchetti. The statistical physics of active matter : from self-catalytic colloids to living cells. *arXiv preprint arXiv :1708.08652*, 2017.

- [27] Daan Frenkel. Entropy-driven phase transitions. *Physica A : statistical mechanics and its applications*, 263(1-4) :26–38, 1999.
- [28] Daan Frenkel. Order through entropy. *Nature materials*, 14(1) :nmat4178, 2014.
- [29] Urs Gasser. Crystallization in three- and two-dimensional colloidal suspensions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 21(20) :203101, 2009.
- [30] Fabio Giavazzi, Matteo Paoluzzi, Marta Macchi, Dapeng Bi, Giorgio Scita, M Lisa Manning, Roberto Cerbino, and M Cristina Marchetti. Flocking transition in confluent tissues. *arXiv preprint arXiv :1706.01113*, 2017.
- [31] Félix Ginot, Isaac Theurkauff, Demian Levis, Christophe Ybert, Lydéric Bocquet, Ludovic Berthier, and Cécile Cottin-Bizonne. Nonequilibrium equation of state in suspensions of active colloids. *Physical Review X*, 5(1) :011004, 2015.
- [32] Guillaume Grégoire and Hugues Chaté. Onset of collective and cohesive motion. *Physical review letters*, 92(2) :025702, 2004.
- [33] Briand Guillaume. Chaîne youtube guillaume briand <https://www.youtube.com/channel/ucuikdro5z27d6kd8r4hwecq>.
- [34] Etienne Guyon. *Physical hydrodynamics*. Oxford University Press, 2001.
- [35] BI Halperin and David R Nelson. Theory of two-dimensional melting. *Physical Review Letters*, 41(2) :121, 1978.
- [36] Jean-Pierre Hansen and Ian R McDonald. *Theory of simple liquids*. Elsevier, 1990.
- [37] Douglas Henderson. A simple equation of state for hard discs. *Molecular Physics*, 30(3) :971–972, 1975.
- [38] Silke Henkes, Yaouen Fily, and M Cristina Marchetti. Active jamming : Self-propelled soft particles at high density. *Physical Review E*, 84(4) :040301, 2011.
- [39] Michel Héritier. *Physique de la matière condensée : des atomes froids aux supraconducteurs à haute température critique*. EDP sciences, 2013.
- [40] Tobias Horn, Sven Deutschländer, Hartmut Löwen, Georg Maret, and Peter Keim. Fluctuations of orientational order and clustering in a two-dimensional colloidal system under quenched disorder. *Physical Review E*, 88(6) :062305, 2013.
- [41] Sara Iliafar, Dmitri Vezenov, and Anand Jagota. In-plane force–extension response of a polymer confined to a surface. *European Polymer Journal*, 51 :151–158, 2014.
- [42] Pierre Illien. Simulations de disques durs actifs. Master’s thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2013.
- [43] Marc Joyeux and Eric Bertin. Pressure of a gas of underdamped active dumbbells. *Physical Review E*, 93(3) :032605, 2016.

- [44] John Michael Kosterlitz and David James Thouless. Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 6(7) :1181, 1973.
- [45] Pavel L Krapivsky, Sidney Redner, and Eli Ben-Naim. *A kinetic view of statistical physics*. Cambridge University Press, 2010.
- [46] Khanh-Dang Nguyen Thu Lam, Michael Schindler, and Olivier Dauchot. Polar active liquids : a universal classification rooted in nonconservation of momentum. *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, 2015(10) :P10017, 2015.
- [47] Khanh-Dang Nguyen Thu Lam, Michael Schindler, and Olivier Dauchot. Self-propelled hard disks : implicit alignment and transition to collective motion. *New Journal of Physics*, 17(11) :113056, 2015.
- [48] Philippe Lavaux.
- [49] Frédéric Lechenault, Olivier Dauchot, Giulio Biroli, and Jean-Philippe Bouchaud. Lower bound on the four-point dynamical susceptibility : Direct experimental test on a granular packing. *EPL (Europhysics Letters)*, 83(4) :46002, 2008.
- [50] Annick Lesne and Michel Laguës. *Scale invariance : From phase transitions to turbulence*. Springer Science & Business Media, 2011.
- [51] Demian Levis and Ludovic Berthier. Clustering and heterogeneous dynamics in a kinetic monte carlo model of self-propelled hard disks. *Physical Review E*, 89(6) :062301, 2014.
- [52] Demian Levis and Ludovic Berthier. From single-particle to collective effective temperatures in an active fluid of self-propelled particles. *EPL (Europhysics Letters)*, 111(6) :60006, 2015.
- [53] Davide Loi, Stefano Mossa, and Leticia F Cugliandolo. Effective temperature of active complex matter. *Soft Matter*, 7(8) :3726–3729, 2011.
- [54] Antoine Manzanera. ransformées de hough denses pour la reconnaissance de formes paramétrées.
- [55] M Cristina Marchetti, Jean-François Joanny, Sriram Ramaswamy, Tanniemola B Liverpool, Jacques Prost, Madan Rao, and R Aditi Simha. Hydrodynamics of soft active matter. *Reviews of Modern Physics*, 85(3) :1143, 2013.
- [56] Martial Mazars. Statistical physics of the freely jointed chain. *Physical Review E*, 53(6) :6297, 1996.
- [57] Andreas M Menzel and Hartmut Löwen. Traveling and resting crystals in active systems. *Physical review letters*, 110(5) :055702, 2013.
- [58] N. D. Mermin and H. Wagner. Absence of ferromagnetism or antiferromagnetism in one- or two-dimensional isotropic heisenberg models. *Phys. Rev. Lett.*, 17 :1133–1136, Nov 1966.

- [59] Bortolo Matteo Mognetti, A Šarić, Stefano Angioletti-Uberti, A Cacciuto, C Valeriani, and Daan Frenkel. Living clusters and crystals from low-density suspensions of active colloids. *Physical review letters*, 111(24) :245702, 2013.
- [60] David R Nelson. *Defects and geometry in condensed matter physics*. Cambridge University Press, 2002.
- [61] David R. Nelson and J. M. Kosterlitz. Universal jump in the superfluid density of two-dimensional superfluids. *Phys. Rev. Lett.*, 39 :1201–1205, Nov 1977.
- [62] Ran Ni, Martien A Cohen Stuart, and Marjolein Dijkstra. Pushing the glass transition towards random close packing using self-propelled hard spheres. *Nature communications*, 4 :2704, 2013.
- [63] Nikolai Nikola, Alexandre P Solon, Yariv Kafri, Mehran Kardar, Julien Tailleur, and Raphaël Voituriez. Active particles with soft and curved walls : Equation of state, ratchets, and instabilities. *Physical review letters*, 117(9) :098001, 2016.
- [64] Lars Onsager. Crystal statistics. i. a two-dimensional model with an order-disorder transition. *Physical Review*, 65(3-4) :117, 1944.
- [65] Jérémie Palacci, Cécile Cottin-Bizonne, Christophe Ybert, and Lydéric Bocquet. Sedimentation and effective temperature of active colloidal suspensions. *Physical Review Letters*, 105(8) :088304, 2010.
- [66] Jeremie Palacci, Stefano Sacanna, Asher Preska Steinberg, David J Pine, and Paul M Chaikin. Living crystals of light-activated colloidal surfers. *Science*, 339(6122) :936–940, 2013.
- [67] RE Peierls. Quelques proprietes typiques des corps solides. *Ann. IH Poincare*, 5 :177–222, 1935.
- [68] Fernando Peruani, Andreas Deutsch, and Markus Bär. Nonequilibrium clustering of self-propelled rods. *Physical Review E*, 74(3) :030904, 2006.
- [69] Fernando Peruani, Jörn Starruß, Vladimir Jakovljevic, Lotte Søgaard-Andersen, Andreas Deutsch, and Markus Bär. Collective motion and nonequilibrium cluster formation in colonies of gliding bacteria. *Physical review letters*, 108(9) :098102, 2012.
- [70] Sriram Ramaswamy. *The mechanics and statistics of active matter*. 2010.
- [71] Sylvain Ravy. *matière condensée*. 2012.
- [72] Gabriel S Redner, Aparna Baskaran, and Michael F Hagan. Reentrant phase behavior in active colloids with attraction. *Physical Review E*, 88(1) :012305, 2013.
- [73] Gabriel S Redner, Michael F Hagan, and Aparna Baskaran. Structure and dynamics of a phase-separating active colloidal fluid. *Physical review letters*, 110(5) :055701, 2013.
- [74] Harvey Rhody. Lecture 10 : Hough circle transform. *Chester F. Carlson Center for Imaging Science, Rochester Institute of Technology*, 2005.

- [75] Volker Schaller, Christoph Weber, Christine Semmrich, Erwin Frey, and Andreas R Bausch. Polar patterns of driven filaments. *Nature*, 467(7311) :73–77, 2010.
- [76] J Schwarz-Linek, C Valeriani, A Cacciuto, ME Cates, D Marenduzzo, AN Morozov, and WCK Poon. Phase separation and rotor self-assembly in active particle suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 109(11) :4052–4057, 2012.
- [77] Thomas OE Skinner, Dirk GAL Aarts, and Roel PA Dullens. Grain-boundary fluctuations in two-dimensional colloidal crystals. *Physical review letters*, 105(16) :168301, 2010.
- [78] Thomas OE Skinner, Dirk GAL Aarts, and Roel PA Dullens. Supercooled dynamics of grain boundary particles in two-dimensional colloidal crystals. *The Journal of chemical physics*, 135(12) :124711, 2011.
- [79] Alexandre P Solon, ME Cates, and Julien Tailleur. Active brownian particles and run-and-tumble particles : A comparative study. *The European Physical Journal Special Topics*, 224(7) :1231–1262, 2015.
- [80] Alexandre P Solon, Y Fily, Aparna Baskaran, Mickael E Cates, Y Kafri, M Kardar, and J Tailleur. Pressure is not a state function for generic active fluids. *Nature Physics*, 11(8) :673–678, 2015.
- [81] Alexandre P Solon, Joakim Stenhammar, Raphael Wittkowski, Mehran Kardar, Yariv Kafri, Michael E Cates, and Julien Tailleur. Pressure and phase equilibria in interacting active brownian spheres. *Physical review letters*, 114(19) :198301, 2015.
- [82] Thomas Speck and Robert L Jack. Ideal bulk pressure of active brownian particles. *Physical Review E*, 93(6) :062605, 2016.
- [83] Joakim Stenhammar, Davide Marenduzzo, Rosalind J Allen, and Michael E Cates. Phase behaviour of active brownian particles : the role of dimensionality. *Soft Matter*, 10(10) :1489–1499, 2014.
- [84] Katherine J Strandburg. Two-dimensional melting. *Reviews of modern physics*, 60(1) :161, 1988.
- [85] Grzegorz Szamel. Self-propelled particle in an external potential : Existence of an effective temperature. *Physical Review E*, 90(1) :012111, 2014.
- [86] Sho C Takatori, Wen Yan, and John F Brady. Swim pressure : stress generation in active matter. *Physical review letters*, 113(2) :028103, 2014.
- [87] John Toner and Yuhai Tu. Long-range order in a two-dimensional dynamical xy model : how birds fly together. *Physical Review Letters*, 75(23) :4326, 1995.
- [88] John Toner and Yuhai Tu. Flocks, herds, and schools : A quantitative theory of flocking. *Physical review E*, 58(4) :4828, 1998.

- [89] B van der Meer, L Filion, and M Dijkstra. Fabricating large two-dimensional single colloidal crystals by doping with active particles. *Soft matter*, 12(14) :3406–3411, 2016.
- [90] Tamás Vicsek, András Czirók, Eshel Ben-Jacob, Inon Cohen, and Ofer Shochet. Novel type of phase transition in a system of self-driven particles. *Physical review letters*, 75(6) :1226, 1995.
- [91] Tamás Vicsek and Anna Zafeiris. Collective motion. *Physics Reports*, 517(3) :71–140, 2012.
- [92] Pascal Viot. Simulation numérique en physique statistique. 2006.
- [93] Hans Hennig von Grünberg, Peter Keim, and Georg Maret. *Phase transitions in two-dimensional colloidal systems*. 2007.
- [94] C. A. Weber, T. Hanke, J. Deseigne, S. Léonard, O. Dauchot, E. Frey, and H. Chaté. Long-range ordering of vibrated polar disks. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :208001, May 2013.
- [95] Christoph A Weber, Christopher Bock, and Erwin Frey. Defect-mediated phase transitions in active soft matter. *Physical review letters*, 112(16) :168301, 2014.
- [96] Eric Weeks and John C. Crocker. transformées de hough denses pour la reconnaissance de formes paramétrées.
- [97] Roland G Winkler, Adam Wysocki, and Gerhard Gompper. Virial pressure in systems of spherical active brownian particles. *Soft matter*, 11(33) :6680–6691, 2015.
- [98] HK Yuen, John Princen, John Illingworth, and Josef Kittler. Comparative study of hough transform methods for circle finding. *Image and vision computing*, 8(1) :71–77, 1990.

Résumé

Au cours de cette thèse, nous avons réalisé la première étude expérimentale de la cristallisation d'un système de disques polaires vibrés, dont il a été montré qu'il constituait un très bon système modèle de disques durs actifs. Par ailleurs ces disques développent spontanément de l'alignement polaire, qui conduit à l'émergence de mouvements collectifs dans la phase liquide. Qu'advient-il de ce liquide actif lorsque la fraction surfacique atteint des valeurs comparable à la fraction de cristallisation à l'équilibre? Comment l'émergence de l'ordre cristallin et l'alignement collectif des particules se combinent-ils?

Dans un premier temps, nous montrons que la transition de cristallisation pour les disques durs polaires diffère totalement de celle des disques durs d'équilibre. Nous observons d'abord une transition de la phase liquide désordonnée, vers une phase dans laquelle les particules s'ordonnent au sein de clusters lesquels, très instables, se fragmentent et s'agrègent sans cesse. Ce « liquide de cluster » au sein duquel structure et dynamique se découplent totalement, reste présent jusqu'à des fractions surfaciques très élevées.

Dans un second temps, nous préparons un cristal parfait à une fraction surfacique proche de celle du packing hexagonal compact. Nous observons une faible gamme de fraction surfacique pour laquelle ce cristal est stable. En deçà, la structure cristalline persiste mais l'ensemble du cristal se met en rotation.

En conclusion, l'activité et l'alignement persistent même aux plus hautes fractions surfaciques. Cependant ceci ne se fait pas au dépend de l'ordre cristallin. Celui-ci s'établit aussi bien à plus haute fraction surfacique qu'à l'équilibre mais il s'accompagne d'un mouvement d'ensemble de la structure, dont la nature dépend de la géométrie du confinement.

Mots Clés

Matière active, cristallisation, disques durs, milieux granulaires, comportements collectifs, études expérimentales.

Abstract

During this thesis, we carried out the first experimental study of the crystallization using a vibrated polar disc system, which has been shown to be a very good model of active hard discs. Moreover, these discs spontaneously develop a polar alignment, which leads to the emergence of collective motion in the liquid phase. What happens to this active liquid when the packing fraction reaches values comparable to the packing fraction of the crystallization at equilibrium? How does the emergence of crystalline order and the alignment between particles combine?

First, we show that the crystallization for polar hard discs is totally different from the one of equilibrium hard discs. We first observe a transition from the disordered liquid phase to a phase in which particles are ordered within clusters which are very unstable, fragmenting and aggregating constantly. This liquid of clusters in which structure and dynamics decouple completely, remains present until very high packing fractions.

In a second step, we prepare a perfect crystal with a packing fraction close to that of the hexagonal compact packing fraction. We observe a small range of packing fractions for which this crystal is remaining stable. Below this, the crystal structure persists but the whole crystal is rotating.

In conclusion, activity and alignment persist even at the highest packing fractions. However, this is not done at the expense of the crystalline order. The latter is established at a packing fraction higher than the one at equilibrium, but it is accompanied by an overall motion of the structure, the nature of which depending on the geometry of the confinement.

Keywords

Active matter, crystallization, hard discs, granular media, collective behaviour, experimental studies.